

IONBOMBÁZÁS HATÁSAINAK VIZSGÁLATA AUGER ELEKTRON SPEKTROSKÓPIAI MÉLYSÉGI FELTÉRKÉPEZÉSEL

PhD értekezés

KÓTIS LÁSZLÓ

Doktori iskola: Eötvös Loránd Tudományegyetem, Természettudományi Kar,
Fizika doktori iskola

Doktori program: Anyagtudomány és szilárdtestfizika

Doktori iskola vezetője: Dr. Csikor Ferenc, egyetemi tanár

Doktori program vezetője: Dr. Lendvai János, egyetemi tanár

Témavezető: Dr. Menyhárd Miklós, tud. tanácsadó

MTA TTK

Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézet

Budapest 2012

I. BEVEZETÉS	4
II. ION – SZILÁRDTEST KÖLCSÖNHATÁS ALAPJAI	7
1. Alapfolyamatok	7
2. Alapvető mennyiségek (klasszikus modellek)	10
3. Az ion –szilárd test kölcsönhatások számítógépes modellezése	20
III. MUNKÁM SORÁN ALKALMAZOTT VIZSGÁLATI MÓDSZEREK	26
1. Auger elektron spektroszkópiai (AES) mélységi feltérképezés	26
2. Transzmissziós elektronmikroszkópia (TEM).....	31
3. Atomi erőmikroszkópia (AFM).....	35
IV. (RELATÍV) PORLASZTÁSI HOZAM VIZSGÁLATA AUGER ELEKTRON SPEKTROSKÓPIAI MÉLYSÉGI FELTÉRKÉPEZÉSEL	39
1. Ionporlasztás. Porlasztási hozam	39
2. A porlasztási hozam kísérleti meghatározása	42
3. Eredményeim: Relatív porlasztási hozam	49
V. KÖZEPES (20 keV, 30 keV) ENERGIAJÚ IONBOMBÁZÁS HATÁSA RÉTEGES SZERKEZETEKRE.....	72
1. A 30 keV energiájú Ga^+ ionok által indukált atomi keveredés	73
2. A 20 keV energiájú Ga^+ , Ar^+ és CF_4^+ ionok hatása	83
VI. TÉZISEK.....	92
VII. KÖSZÖNETNYÍLVÁNÍTÁS.....	93
VIII. IRODALOMJEGYZÉK.....	94

A gyorsított ionok kölcsönhatása szilárd anyagokkal már több mint száz éve felkeltette a tudósok érdeklődését, ez volt a katódporlasztás jelensége. Ugyanakkor a gyorsított ionok hatásainak részletesebb feltárása, kihasználása csak az utóbbi néhány évtizedben indult el. Mára mindennapivá vált a különböző ion – szilárdtest kölcsönhatásokon alapuló új és újabb technikák alkalmazása az iparban és a tudományban. A munkám során a kölcsönhatáskor lezajló folyamatok közül két főbb folyamat kísérleti tanulmányozását választottam ki.

Ezek közül az első az ionbombázásos anyageltávolítás – vagyis az ionporlasztás. Az ionporlasztás jelenségét az utóbbi egy – két évtizedben megfigyelhetjük új eszközökben és kihasználjuk új vagy régebbi anyagvizsgáló módszerekben is. Az ionporlasztás természetének vizsgálatánál globálisan használják jellemzésre az úgynevezett porlasztási hozamot, amely tekinthető az adott anyag fizikai paraméterének. Jelentése felfogható úgy, mint az adott anyag felületének válasza egy adott körülmények között zajló ionbombázásra. Példaként említeném meg, hogy ez a paraméter nagy szerepet játszik olyan szerkezetek élettartamának előrejelzésében melyek alkotóelemei ionbombázásnak vannak kitéve. Ilyenek a reaktorok belső alkatrészei, a műholdak ionhajtóművei, gyorsítók stb.. A kialakult anyagvizsgáló módszereknél is szükséges e paraméter értékének és viselkedésének ismerete. Például a Transzmissziós Elektronmikroszkópia (TEM) ionporlasztásos mintakészítésnél és mélységi feltérképezésnél (mélységi profilírozás).

A porlasztás analitikus elméletének megértésében jelentős szerepe volt P. Sigmund munkájának 1969-ben. Végül a fejlődés két irányba indult el, az egyik a porlasztási hozam kísérleti meghatározása a másik a különböző elméleti és szimulációs eljárások kidolgozása. A kísérleti eredmények irodalmát feltárva láthatjuk, hogy mostanra több könyvnyi porlasztási hozam adat gyűlt össze gyakorlatilag az utóbbi négy évtized alatt. Ezen adathalmaz átöleli a néhány keV és a 100 keV közötti energiatartományt, ahol a porlasztás, mint jelenség leginkább megfigyelhető. Ugyanakkor fontos megjegyezni, hogy az adatok nagy többsége általában merőleges ionsugár beesésre és a reaktorokban jelenlévő ion – anyag párosításokra vonatkozik (H , D , $^4He \rightarrow C$, Be , B). Kevésbé találkozunk kísérleti adatokkal más ionsugár beesési szögekre, sűrűlő ionbeesésre és a kisebb ionenergiájú tartományban néhány 100 eV és néhány keV között, és így a porlasztási hozam viselkedése ilyen körülmények között mérsékelten ismert. Ez utóbbi kísérleti körülményeket viszont gyakran alkalmazzák kísérleti anyagvizsgáló módszerek, de ugyanúgy előfordulnak a modern technológiákban is.

Amint azt már említettem az ionporlasztási hozam meghatározására és az ionbombázás modellezésére léteznek különféle előrejelző (illesztő) és szimulációs módszerek is. Ezek folyamatosan fejlődnek és céljuk, hogy egyre pontosabb eredményeket adjanak egyre tágabb ionbombázási feltételek mellett. Ilyen közismert szimulációk: SRIM, TRIDYN, ACAT és az Eckstein féle illesztés, stb. Mivel ezek különböző modelleken, feltételezéseken alapulnak ezért egyes esetekben kísérleti ellenőrzésük elengedhetetlen.

A fentiekben összefoglaltak alapján munkám első felében az ionporlasztási hozam kísérleti meghatározást tűztem ki célul. Az ionporlasztási hozam kísérleti meghatározásának fő feladata az, hogy az ionindukált mellék jelenségeket sikerüljön kiküszöbölni. A kísérletekhez az Auger Elektron Spektroszkópiai Mélységi Feltérképezés módszert alkalmaztam. Előnye a nagy mélységfelbontás és a felületi összetétel változásainak kvantitatív meghatározása. Emellett megvan a lehetőség az ionbombázás indukált mellékhatások visszaszorítására is. Sikerült meghatározni több anyag ionporlasztási hozamát kisenergiás (1keV) Ar^+ ionbombázásra és súrlódó szögű ionbeesési szögtartományban. Az anyagokat vékonyréteg (-réteghatárrendszer) formájában vizsgáltam. A kísérletileg meghatározott ionporlasztási hozamokat természetesen összehasonlítottam a különböző előrejelző számítások (szimulációk) eredményeivel.

A másik ionbombázás indukált folyamat, amit munkám során vizsgáltam a két szilárd anyag határán zajló atomi keveredés, vagy röviden ionkeverés. Ilyen anyaghatárok mindig vannak vékonyrétegekben, amiket réteghatár átmenetnek hívunk. Ezeknek fontos szerepük van egyes vékonyréteg eszközök (optikai, félvezető, mechanikai) működésében, de ugyanakkor viselkedésük vizsgálata információt adhat az ionbombázás hatására lezajló termodinamikai és atomi folyamatokról is. Az ionbombázással a réteghatár átmenetek szélességét, az ott keletkező szilárd fázisokat befolyásolhatjuk. A vékonyréteg rendszereknél ionkeverést akkor figyelhetünk meg, amikor a bombázó ionok vagy a másodlagosan meglökött atomok energiájuk egy részét a réteghatár átmenetek közelében adják le. Technikai szempontból az ionkeverés lehet hasznos vagy nemkívánatos jelenség is. Ionbombázással az igényeknek megfelelően módosíthatjuk az átmenet szélességét ugyanakkor ionimplantációnál, ionbombázásos vágásnál károsító folyamatok is lehetnek.

Általában az atomi keveredés szoros hasonlóságot mutat a diffúzió jelenségével, mert igen sok esetben a keveredést a szokásos hibafüggvény írja le. A hibafüggvény paraméterei függenek a bombázó ionok fajtájától és energiájától. Ettől az általános megfigyeléstől lehetnek kivételek is, ezekről az irodalomban nagyon kevés adatot találni. Ugyanilyen kevés adat kutatható fel a közepes (20 – 50 keV) energiájú ionbombázást rutinszerűen alkalmazó

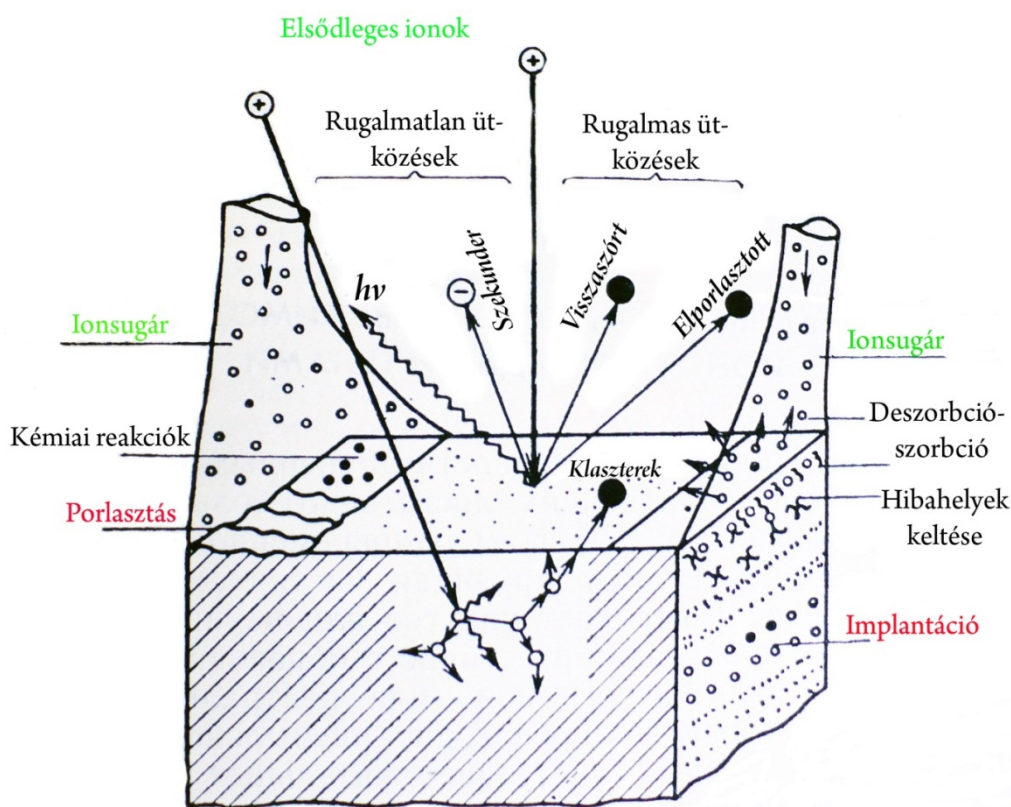
Fókuszált Ionsugár technika alkalmazása következtében létrejövő atomi keveredésről. Néhány munkát találtam Ga^+ ionbombázás esetén fellépő porlasztásról, az implantált Ga^+ ionok mélységbeli eloszlásáról és az implantáció okozta roncsolódás modellezésével kapcsolatban. Ugyanilyen nehéz kísérleti adatokat találni más ionfajták által okozott atomi keveredés esetére, például klaszteres ionbombázás alkalmazására, melynek nagy előnyei vannak a káros felületi morfológiaváltozások redukálásában.

Érdemesnek tartottam kísérletileg megvizsgálni így a gyakran alkalmazott közepesnek mondható ionenergia tartományban lezajló ionkeverés folyamatát. Munkám e részében megvizsgáltam a különböző energiájú, 20 keV és 30 keV, Ga^+ ionbombázás indukált atomi keveredést. Nagyon érdekesnek tűnt számomra összehasonlítani a különböző ion típusok hatásait ugyanolyan bombázási feltételek (energia, ionbeesési szög) mellett. Kísérletileg meghatároztam a rétegátmenet változásának függését a bombázó ionok dózisától és fajtájától. Természetesen ebben az esetben is ellenőriztem, hogy használhatók-e a szimulációk a jelenség leírásához.

A munkám során az Auger elektron spektroszkópiai mélységi analízis kiegészítéseként a vizsgált vékonyrétegek (rendszerek) más vizsgálati módszerekkel is jellemezve lettek. Ilyen a Transzmissziós Elektron Mikroszkópia (TEM) melynek segítségével a rétegrendszerek szerkezetéről kaptam információt. A vékonyrétegek ionindukált felületi morfológiájának jellemzésére pedig az atomi erőmikroszkóp (AFM) nyújtott segítséget.

1. Alapfolyamatok

A szilárd testek felületét termikusnál nagyobb energiájú töltött részecskékkel való bombázásánál egyidejűleg több összetett folyamat játszódik le. A bombázó részecske becsapódáskor rugalmas vagy rugalmatlan ütközést él át. Ilyenkor szóródás megy végbe melynek következtében pozitív, negatív ion vagy semleges részecskék indukálódnak. Az 1. ábrán láthatjuk, hogy ionbombázás indukált anyageltávolítás és a bombázó ionoknak a céltárgy mélyén való maradása is megfigyelhető lehet. Ezek a folyamatok az úgynevezett ionporlasztás és a klasszikus ionimplantáció. Valamilyen valószínűséggel elektron emissziót és elektromágneses sugárzást is detektálhatunk [1,2].



1. Ábra: Alapvető ionbombázás indukált folyamatok és hatásuk [3]

Az említett ionbombázás indukált folyamatok eltérő arányban jelentkeznek különböző ionenergiákon [4].

Nagyon alacsony (<5 eV) kinetikus energiáknál egy bombázó atom (ion) csak a céltárgy felületének legfelső atomsorával lép kölcsönhatásba. Ugyanis amikor egy atom ilyen kis energiával esik egy atomosan tiszta céltárgy felületére, akkor visszaverődik, vagy termikus egyensúlyba kerül a felületi atommal és ezután deszorbeálódhat. Ebben az esetben az atom állapota úgynevezett akkomodációs vagy letapadási együtthatóval jellemezhető [5]. Az utóbbi években gyakran alkalmazzák a sub- ion implantációt jó adhéziójú rétegek növesztésénél, mint például CVD gyémánt rétegek esetében [6]. Ebben az esetben a kis ionenergia (~ 10 eV) miatt a behatolás a felső néhány atomsor alá korlátozódik, és nem idéz elő fázisátalakulást.

Az atomi kötési energiáknál nagyobb kinetikus energiájú bombázás esetén egy újabb folyamattal találkozhatunk. A kristályrács atomjai új pozícióba mozdulnak el, melynek következtében felületi roncsolódás jön létre. Olyan ionenergiák mellett melyek meghaladják az úgynevezett porlódási küszöbenergiát vezető szerepet vesz át az ionporlasztás. A legtöbb anyagra ez a küszöbenergia $10 - 100$ eV tartományba esik [7]. A porlasztás effektivitása az ütközéseknél (nem csak elsődleges) leadott energia mennyiségétől, a behatolási mélységtől és az átadott impulzus vektorának irányától is függ.

Az ionenergia növelésével növekszik a behatolás mélysége, így az ionbombázás keltette roncsolódás egyre inkább térfogatívá válik. Ennek következtében a porlasztási hozam elérve maximumát megszűnik növekedni az ionenergia növelésével és lassú csökkenésbe kezd. A porlasztás effektivitásának maximumhelye több tényezőtől (ion fajtája, beesési szöge, stb.) függ, és széles, néhány keV – MeV tartományban változik. Általában a MeV tartomány elején csökkeni kezd [9].

A mélyebbre hatoló ionok úgynevezett kaszkádos ütközések sorozata közben fokozatosan veszítenek energiájukból és végül egy adott mélységben jellegzetes eloszlásuk [4] alakul ki. A fenti folyamat az implantáció [10]. A kaszkádos ütközések következményeként sugárkárosodás megy végbe, ami általában ponthibák intenzív keltésében nyilvánul meg [8]. Aztán a behatoló részecske különböző migrációk és diffúzió következtében akár deszorpcióval távozhat a céltárgyból.

Előfordul, hogy az anyageltávolítás (porlasztás) lokálisan inhomogén [11]. Ez a jelenség ionbombázás indukált felületi morfológiaváltozást eredményez, azaz felületi durvulást vagy simulást [12, 13]. A felületi durvaság kialakulása függ az ionbombázás paramétereitől [14, 15], a porlasztott céltárgy szerkezetétől (a porlasztási hozam ugyanis erősen függ a kristályorientációtól), anyagától, felületi szennyezők jelenlététől [16], stb. Az ionbombázás indukált durvulás véletlenszerű és rendezett felületi mintázódást is eredményezhet, sok esetben szabályos hullámosodást [17]. Jól ismert az a jelenség is, amikor

a különböző árnyékhatások miatt egyensúly alakul ki a porlasztás és a felületi durvulás között így drasztikusan lecsökken a porlasztás. Többnyire a vékonyréteg technológiában, vékonyréteg vizsgálatban alkalmazott kísérleti technikáknál a durvulás jelensége nem kívánatos [18], ugyanakkor a szakirodalomban több munka van az ionbombázás indukált durvulás irányíthatóságának leírására is [19].

Elmondhatjuk tehát, hogy a bombázó ionok energiájától függően a szilárd testre gyakorolt alapvető hatásuk felületi, felület közeli és térfogati lehet. Ezért különböző célokra különböző energiájú ionsugarat alkalmaznak. Így a néhány száz eV energiájú ionok jól alkalmazhatóak felületek tisztítására, a néhány száztól néhány ezer eV energiatartományú ionok fizikai porlasztásra és a néhány ezertől néhány százezer eV energiájúak pedig ionimplantációra.

2. Alapvető mennyiségek (klasszikus modellek)

Az ionbombázás által keltett hatások leírásához (megértéséhez) be kell vezetnünk fizikai mennyiségeket, paramétereket és közelítéseket. A dolgozat alapvetően kísérleti munkákra támaszkodik így ebben a fejezetben ezek közül a legáltalánosabbakat szeretném ismertetni a teljesség igénye nélkül, melyek ismerete közvetve segítették a kísérleti eredmények értelmezését. Pontosabb és részletesebb leírásuk megtalálható néhány ismertebb alap munkában, mint pl.: M. Nastasi, J. W. Mayer és J. K. Hirvonen – „Ion – solid interaction: Fundamentals and Applications” című könyve [4]; ugyanilyen széles látószögű, de rövidebb összefoglalást találunk A.R. González-Elípe, F. Yubero és J. M. Sanz – „Low energy ion assisted film growth” című könyvének [20] bevezető részében; az előzőekhez hasonlóan Giber J., Josepovits K., Gyulai J., Biró L. P. – „Diffúzió és Implantáció szilárdtestekben” című tankönyve [10] is érthetően (magyarul) tárgyalja az ion – szilárdtest kölcsönhatás alapvető fogalmait.

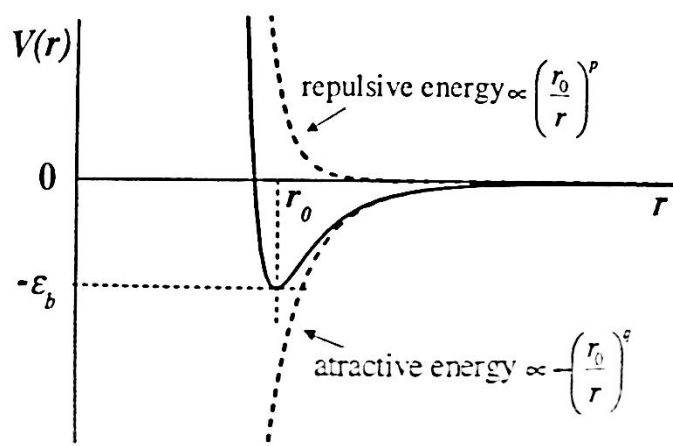
Amikor a gyorsított ion behatol a szilárd testbe, kölcsönhat a testet alkotó atomok elektronjaival és magjaival. Ez a kölcsönhatás egészen az ion végleges megállásáig változtatja eredeti haladási irányát. Itt kulcsszerepet játszik az egyes ütközéseknél átadott energia mennyisége. Az ütközések nyomon követése és az ütközésenként átadott energia pontos meghatározása leírja az ion szilárd testre gyakorolt hatását, valamint lehetőséget ad végső pozíciójának meghatározására.

Atomközi kölcsönhatás

A szilárd testben az atomok egyensúlyi helyzetben helyezkednek el a $V(r)$ atomközi potenciálfüggvénnyel meghatározott helyeken. Egyensúlyi helyzetben a $V(r)$ potenciál minimuma r_0 atomtávolságnak megfelelő helyen van. Az atomközi kölcsönhatás leírására több, különféle feltételezéseken alapuló potenciálfüggvény modell létezik. Ezek között van a merev gömb közelítés, négyzetes távolság függésű és a Morse (1929), Lennard és Jones (1924) által javasolt leginkább valósághű modell. Az utolsóként említett közelítés analitikus formáját az 1. egyenlettel adhatjuk meg:

$$V(r) = \left[c_1 \left(\frac{r_0}{r} \right)^p - c_2 \left(\frac{r_0}{r} \right)^q \right], \quad (1)$$

ahol c_1 , c_2 , p és q ($p > q$) állandók. Az 2. ábrán láthatjuk a fenti egyenlettel megadott Lennard – Jones atomközi potenciált. A taszító összetevő gyorsabban lecseng, mint az attraktív és eredőjük r_0 pozícióban minimumot mutat.



2. ábra: Lennard – Jones típusú atomközi potenciál $V(r)$ alakja és alkotói

A potenciálvölgy értéke r_0 távolságnál ε_b a szilárdtest atomjainak kötési energiájára (E_b) jellemző. Ez a kötési energia arányos a koordinációs számmal n_c és a minimális potenciális energiával ε_b , azaz:

$$E_b \propto n_c \varepsilon_b, \quad (2)$$

A (2) arányosság rámutat arra, hogy egy felületi atom kötési energiája mindig különbözik egy ugyanilyen a szilárd test belsejében lévő atom kötési energiájától. Így megkülönböztetünk felületi kötési energiát E_b^s és rácsbeli kötési energiát E_b^l . Érdekes megemlítenünk, hogy a felületi kötési energia E_b^s megközelítőleg egyenlő a szublimációs hővel ΔH_s . Az E_b^s és E_b^l értéke 2 – 8 eV tartományba esik anyagtól függően.

Egy másik fontos energiamennyiség az áthelyezési (displacement) energia E_d ; ez az az energia, amely egy atom rácsbeli helyzetéből való maradandó kimozdításához szükséges. Ez az elmozdítás rácshiba képződéssel jár együtt, gyakran vakancia – intersticiális hibapárok képződnek (Frenkel párok). Kristályos szerkezetnél az elmozdításhoz szükséges energia gát magassága függhet a kristálytani irányoktól; alacsonyabb a nyitott, azaz a nagy Miller indexű irányokban, mint a sűrűbben pakolt irányokban. Az áthelyezési energia E_d az 5 eV környékén van polimerek esetében, míg fémeknél ~ 25 eV tartomány jellemző. Persze ezek az értékek iránytól függően 2 – faktossal változhatnak. T. E. Mitchell fenomenologikus leírása szerint az áthelyezési határenergia 4 – 5-szöröse az anyag ΔH_s szublimációs hőjének [4].

Ion – szilárdtest közötti kölcsönhatás: árnyékolási potenciálok

Amikor egy ion behatol a szilárd test belsejébe, akkor kezdetben távolabb van később meg közelebb kerülhet az atomhoz, mint az atomközi potenciál $V(r)$ által egyensúlyinak megengedett r_0 távolság. Tehát ahhoz, hogy jól leírjuk a kölcsönhatást, olyan atomközi potenciál kell, amely ezeket az eseteket jól követi. Ha két atom távol ($r > r_0$) van egymástól és közelítenek egymáshoz, akkor elkezdenek működésbe lépni a kémiai és Van der Waals vonzó erők. Abban az esetben, amikor elérik $r < a_0$ (Bohr sugár $a_0=0.053$ nm) távolságot, közöttük a Coulomb – féle $V_C(r)$ potenciál fog dominálni, vagyis:

$$V_C(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}, \quad (3)$$

Középtávú esetre, amikor $a_0 < r < r_0$ a $V_C(r)$ potenciál gyakran meghatározható az úgynevezett árnyékolt Coulomb potenciállal, így:

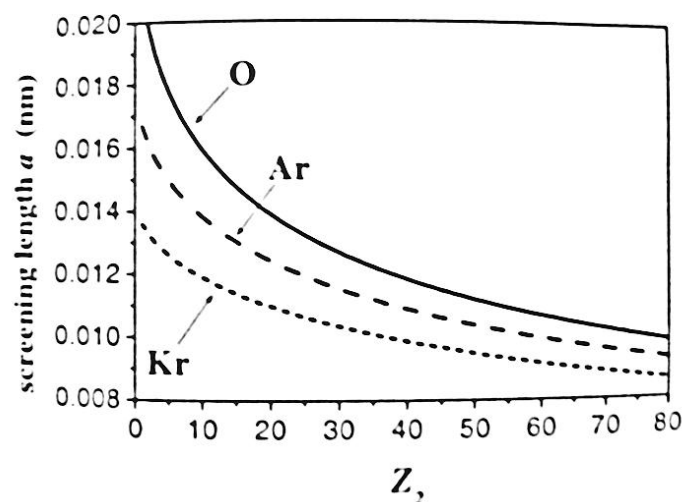
$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \chi(r), \quad (4)$$

ahol $\chi(r)$ az árnyékoló függvény. Az árnyékoló függvény tag nagy távolságoknál nullához közelít, míg kis távolságok esetére 1 –hez.

Több modellel is találkozhatunk a szakirodalomban a $\chi(r)$ árnyékoló függvény leírására. Ezek között ott vannak a Thomas – Fermi, Bohr, Moliere, Sommerfeld, Lenz – Jenzen és Ziegler – Biersack – Littmark (ZBL) által kidolgozott közelítések [104]. Az árnyékoló függvényt gyakorlati okokból egy $x = r/a$ redukált távolság függvényeként szokták megadni, ahol a – árnyékoló hosszúság az adott kölcsönhatásra. Az a – értékét az árnyékoló függvény térbeli kiterjedése alapján szokták becsülni. Pl. a Thomas – Fermi statisztikus modell alapján az árnyékolási hosszt a következőképpen számíthatjuk:

$$a[nm] = \frac{0.0469}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad (5)$$

A 3. ábrán láthatjuk az árnyékolási hosszúság függését O, Ar és Kr ionok esetére változó céltárgy rendszám esetére. Láthatjuk, hogy minél jobban közelít egymáshoz a bombázó ion és a céltárgy atom rendszáma, annál nagyobb lesz az árnyékolási hossz, vagyis kevésbé kerülnek fedésbe az elektronfelhők. Azt is láthatjuk, hogy ebben az esetben a legnagyobb 36 rendszámú Kr ion kerül a legközelebb a céltárgy atom magjához így az elektronfelhők kölcsönhatásából eredő fékeződés ebben az esetben lesz a legkisebb.

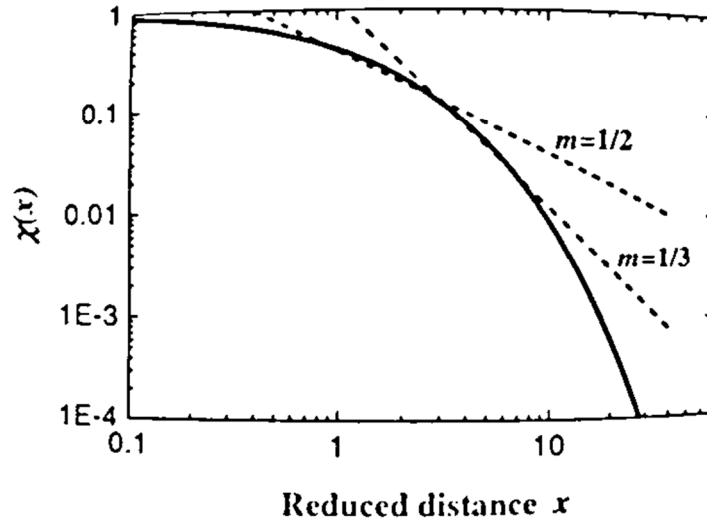


3. ábra: Árnyékolási hossz O, Ar és Kr ionok esetében Z_2 rendszámú atommal való kölcsönhatáskor

Annak érdekében, hogy az árnyékolási potenciál függvényt $\chi(r)$ könnyebb legyen felhasználni a szimulációs programokban megadják hatványfüggvény alakját is, úgymint:

$$\chi(x) \equiv \chi(r/a) \propto \left(\frac{r}{a}\right)^{1-\frac{1}{m}}, \quad (6)$$

ha $V(x)$ potenciál felírható $x^{-1/m}$ alakban. Függően attól, hogy melyik m – paraméterrel illesztett árnyékoló potenciál függvény írja le az ütköző atomok kölcsönhatását az m – paraméter a következő értékeket veheti fel: $m = 1, 1/2, 1/3$, stb. A kis- és közepes energiatartományban általában az $m = 1/3$ érték közelíti a legjobban a valós potenciálfüggvény alakját. Különböző m – paraméterekre az árnyékoló potenciál alakulását mutatja be a 4. ábra. Az ábrából megállapíthatjuk melyik hatványfüggvény (milyen m – érték) illeszkedik leginkább az árnyékoló potenciál görbéjére.



4. ábra: Hatványfüggvény közelítés szemléltetése a $\chi(r)$ árnyékoló potenciál megadására

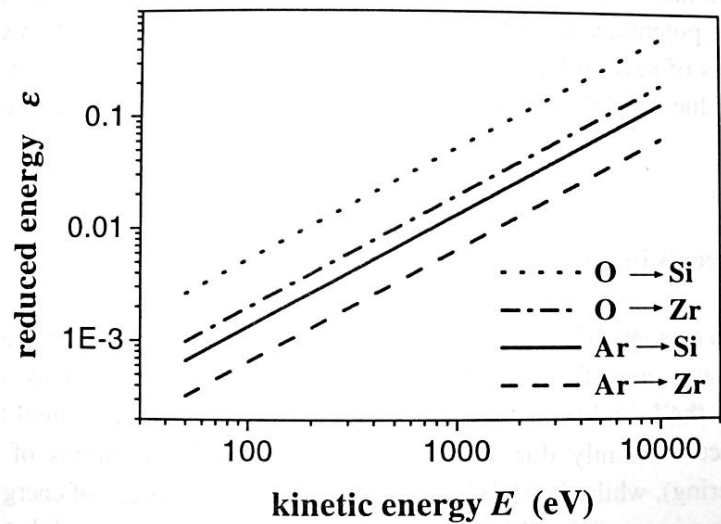
A hatványfüggvényes közelítés egyik előnye, hogy egyszerűsített analitikus megoldást kínál adott ion – szilárdtest kölcsönhatást jellemző mennyiségek meghatározására. Ugyanakkor meg kell állapítani a szükséges m – értéket, melyet a (6) arányosságba helyettesítve legjobb egyezést kapunk a valódi $\chi(r)$ függvényre.

Redukált energia

Különböző praktikus okok miatt bevezethető az úgynevezett redukált energia ε , amely a következő alakban definiálható:

$$\varepsilon = \frac{0.69a}{Z_1 Z_2} \frac{M_2}{M_1 M_2} E, \quad (7)$$

ahol, a – az árnyékolási hossz, mely ebben az esetben az árnyékoló potenciál függvény $x = r/a$ redukált koordinátájának kiszámításához is felhasználunk. Az egyenletben szereplő E , M_1 és Z_1 – a bombázó ion kinetikus energiája eV egységekben, atomtömege és rendszáma; M_2 és Z_2 – pedig a céltárgy atomjainak atomtömege és rendszáma. Az 5. ábrán láthatjuk a redukált energia értékeinek alakulását különböző ion – céltárgy atom párosítások esetében. Ez a redukált energia tulajdonképpen nem más, mint az árnyékolási hossz és az ütközésnél (szóródásnál) elért legkisebb távolság aránya. Ezzel jellemezhető, hogy az adott E energiájú ion mennyire lesz leárnyékolva a céltárgy atom elektronfelhője által.



5. ábra: A számított redukált energia értékek néhány ion – céltárgy konfigurációra

Az 5. ábrán megfigyelhetjük, hogy az ε redukált energia csökken, minél nehezebb atom ütközik egymással. Ugyanakkor azt is láthatjuk az ábra alapján, hogy 10 keV ionenergián az ionok már kb. 10 –szer közelebb kerülnek a céltárgy atom magjához, mint az árnyékolási hossz.

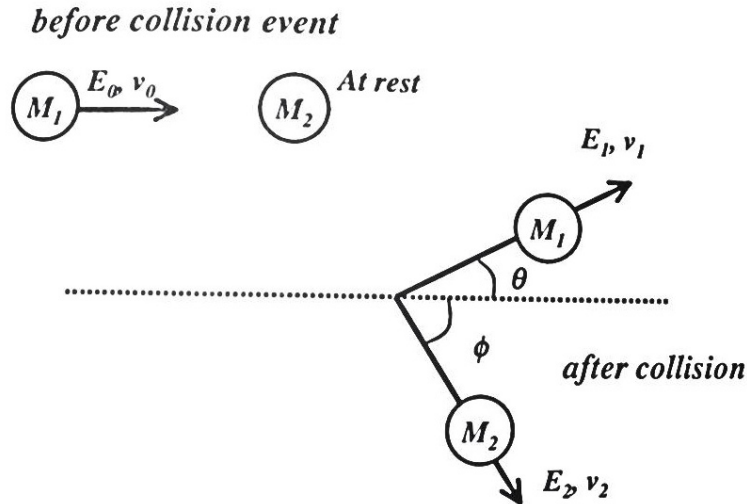
Páros (bináris) ütközések modellje

A bombázó ion szempontjából két fő következménye van a kölcsönhatásnak. Az egyik a kezdeti pályától (iránytól) való eltérés, a másik pedig a folytonos lassulás egészen megállásig. Az elsőt főként rugalmas ütközések okozzák. Nem túl nagy energiákon, azaz $\varepsilon < 0.4$ tartományban, a lassulás is túlnyomó részt a magok rugalmas szóródása közbeni energiavesztésnek a következménye.

A két részecske közötti szóródási folyamatot a klasszikus szórási elmélettel írhatjuk le. Feltételezzük azt is, hogy bármilyen elektronsugárzás és ionizációs folyamat csak energiavesztést okoz. Azt is feltételezzük, hogy az ütköző atomok közül az egyik a kezdeti időpontban nyugalmi helyzetben van. Ezt a felállást szemlélteti a 6. ábra. Felírva az energia és az impulzus megmaradás törvényét egyszerűen megkaphatjuk a bombázó ion ütközés előtti és utáni energiájának hányadosát:

$$\frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{M_1 \cos \theta \pm (M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2}}{M_1 + M_2} \right]^2, \quad (8)$$

ahol, θ – szórási szög (6. ábra), E_0 , E_1 – az ion energiája ütközés előtt és után. A zárójelben lévő tört számlálójában „+” jelet írunk, ha $M_1 < M_2$, tehát ha az ion atomtömege nagyobb a céltárgy atomjának tömegétől. Ilyenkor bármilyen szórási szög előfordulhat, míg $M_1 > M_2$ esetben a maximális szórási szög csak $\arcsin(M_2/M_1)$ lehet.



6. ábra: A páros (bináris) ütközés modelljének sematikus ábrázolása M_1 ion és M_2 atom esetén

Kiszámíthatjuk a nyugalmi céltárgy atomnak átadott E_2 energia és az ion energia arányát is, a következő egyenlettel:

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} \cos^2 \varphi, \quad (9)$$

ahol, φ – a céltárgy atom szórási szöge. A (8, 9) egyenletekből láthatjuk, hogy a maximális energia átadás a pontosan szembeütközésnél tapasztalható, ebben az esetben a maximálisan átadott kinetikus energia a következőképp számítható:

$$T_{max} = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} E_0, \quad (10)$$

A fenti egyenletből láthatjuk azt is, hogy csak $M_1 = M_2$ esetén kaphatjuk meg a teljes energiaátadást. Ezek alapján kiderül az is, hogy az energiaátadást ebben a közelítésben nem befolyásolják az ütköző részecskék töltési állapotai. A (10) egyenlet alapján bevezethetjük azt a minimális E_{th} ion határenergiát, amely E_d energiának megfelelő atomi elmozdulást idéz elő. Így írhatjuk fel:

$$E_{th} = \frac{(M_1+M_2)^2}{4M_1M_2} E_d, \quad (11)$$

Tehát ha az ion energiája $E_0 < E_{th}$, akkor a bombázó ion nem okoz maradandó atomi elmozdulást, avagy hibaképződést (Frenkel párokat).

Univerzális nukleáris fékeződés

A teljes fékeződés két részből összetettnek tekintjük: az atom elektronfelhőjének (elektronfékeződés), illetve az atommagoknak (nukleáris fékeződés) átadott energia alapján. A nukleáris fékeződés függetlenül tárgyalható, mert az ionsebességek miatt a folyamat során az atom "lecsatolódik" a rácstról, tehát tárgyalható két szabad (bár árnyékolt töltéssel

rendelkező) részecske rugalmas kinetikai szórásaként. Ez a közelítés nem veszi figyelembe az esetleges korrelációt a "kemény" nukleáris ütközések és az elektronfelhővel való rugalmatlan kölcsönhatás között. Ezt a korrelációt a szilárd testben kicsinynek vesszük a kollektív hatások feltehető átlagoló hatása miatt. A korreláció azonban nem elhanyagolható, ha egyedi atomok ütközéseit, vagy ionoknak vékony rétegekben létrejövő ütközéseit tárgyaljuk. A fékeződés jellemzője tehát az egységnyi úton leadott energia dE/dr (másutt dE/dx). Ennek az $S_{n,e}(E)$ fékezési keresztmetszettel való kapcsolatát az anyag N atomi sűrűsége teremti meg: $dE/dR = NS_{n,e}(E)$. A fékezési hatáskeresztmetszetet általában a redukált energia függvényében adják meg. Az $S_{n,e}(E)$ tehát a következő egyenlettel átkonvertálható $S_{n,e}(\varepsilon)$ formába [10]:

$$S_{n,e}(E) = 18.1 a Z_1 Z_2 \frac{M_1}{M_1 + M_2} S_{n,e}(\varepsilon) , \quad (12)$$

Ez az átalakítás nagymértékben segíti az összehasonlításokat különböző energiaviszonyú ütközések között és megkönnyíti a nukleáris és elektronos szóródások által előidézett veszteségek összehasonlítását.

Nukleáris fékeződés

Ahhoz, hogy energetika szempontjából jellemezzünk egy szórási folyamatot nem elegendő csak az átadott energia ismerete egyes ütközéseknél, de szükséges megvizsgálni az energiavesztés eloszlását is. Tudnunk kell például az energiavesztés valószínűségét. Ez a valószínűség egy úgynevezett differenciális hatáskeresztmetszet $d\sigma_n(E)/dT$ bevezetésével jellemezhető. Anélkül, hogy belemennénk a részletekbe az energiaátadás differenciális hatáskeresztmetszetét nukleáris fékeződés esetére így írhatjuk fel:

$$\frac{d\sigma_n(E)}{dT} = \frac{C_m}{E^m T^{1+m}} , \quad (13)$$

ahol, C_m – együttható, amely függ az ütköző atomok fajtájától.

C_m a következő egyenlettel adható meg:

$$C_m = \frac{\pi}{2} \lambda_m a^2 \left(\frac{2Z_1 Z_2 e^2}{a} \right)^{2m} \left(\frac{M_1}{M_2} \right)^m , \quad (14)$$

ahol, λ_m – egy együttható mely a hatványfüggvény közelítéssel leírt atomközi potenciállal hozható kapcsolatba. Meg lehet jegyezni, hogy $m = 1$ és $\lambda_m = 0.5$ esetén a jól ismert Rutherford szórásról beszélünk.

A nukleáris fékeződés nagy energiavesztéssel és nagy szórási szögekkel jár együtt. Ez a folyamat felelős a kristályrács roncsolódásáért. Azért, hogy megkapjuk a nukleáris fékeződés keresztmetszetét integrálnunk kell az differenciális energia átadási

hatáskeresztmetszetet a minimális és maximális átadott energia tartományban, azaz a következőképpen:

$$S_n(E) = \int_{T_{min}}^{T_M} T \frac{d\sigma_n(E)}{dT} dT \quad (15)$$

Valójában a T_{max} értékét a (10) egyenlet adja, a T_{min} értékét pedig az áthelyezési (displacement) E_d energiának választhatjuk. Hatványfüggvény közelítést alkalmazva a $T_{min}=0$, akkor a nukleáris fékezési hatáskeresztmetszet az egyszerűség kedvéért a redukált energia függvényében az alábbiak szerint alakul:

$$S_n(\varepsilon) = \frac{\lambda_m}{2(1-m)} \varepsilon^{1-2m} \quad (16)$$

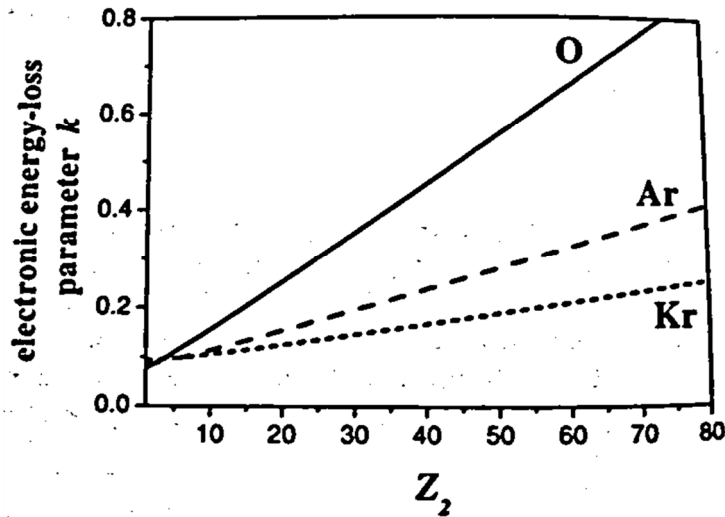
A (13 – 16) egyenletek segítségével ~20% pontossággal kiszámolható az egységnyi úton leadott energia dE/dr és a nukleáris fékezési hatáskeresztmetszet a Thomas – Fermi modellt alkalmazva [4]. Az 1 – 10 keV ionenergia tartományban ahol $\varepsilon < 0.2$ és $m = 1/3$, a nukleáris fékezési hatáskeresztmetszet és a dE/dr értéke $E^{1/3}$ függés szerint növekszik. Ugyanakkor nagyobb ionenergiákon (10 – 100 keV), amikor $0.2 < \varepsilon < 2$ és $m = 1/2$, az S_n nem mutat függést az E ionenergiától.

Elektronos fékezés

A nukleáris fékezés mellett adott energiaviszonyok mellett már jelentőssé válik az elektronfelhőn való fékezés. Ez a típusú energiaátadás nem jár atomi elmozdulások keltésével. Az ide vonatkozó szakirodalomban több modellt is találhatunk [4]. A leggyakrabban alkalmazott közelítés azonban a Lindhard – Scharff féle modell, melyben a redukált energiára vonatkoztatott elektronos fékezési hatáskeresztmetszet $S_e(\varepsilon)$ alacsony energiákra így adható meg:

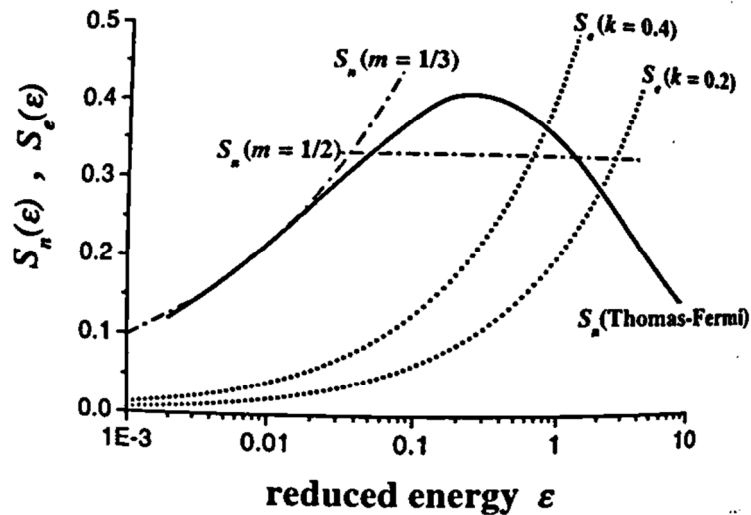
$$S_e(\varepsilon) = k\varepsilon^{1/2}, \quad (17)$$

ahol, k – az úgynevezett elektronos energiavesztési paraméter. A gyakorlatban általában k értéke 0.2 és 0.5 között mozog (lásd 7. ábra). A k paraméter empirikus alakjából [20] következtethetünk arra, hogy az elektronos fékezés leginkább akkor kap hangsúlyt, ha könnyű kevés elektronszámú bombázó ion ütközik nehéz sok elektronszámú céltárgy atommal.



7. ábra: Az elektronos energia veszteségi k-paraméter O, Ar és Kr ionok esetén

A fentiekben leírt (16) és (17) egyenletek alapján számolt fékezési hatáskeresztmetszetek függését a redukált energiától a 8. ábra szemlélteti.



8. ábra: A nukleáris és elektronos fékezési hatáskeresztmetszetek viselkedése különböző paraméterek mellett a redukált energia függvényében

Megbecsülve az egységnyi úton leadott energia dE/dr értékét Si céltárgy 400 eV energiájú Ar^+ ionokkal való bombázása mellett az kapjuk, hogy a nukleáris fajlagos energiavesztés ~ 300 eV/nm, míg az elektronos csak ~ 10 eV/nm. Látható a nagyságrendi különbséget a két veszteségi folyamat között.

Elmondható tehát, hogy a dolgozatban alkalmazott ionenergiák (1, 20 és 30 keV) mellett az elektronfelhőn való energiavesztés kicsi és így hatása elhanyagolható az egyszerű ballisztikus ütközések következtében zajló energiavesztéssel szemben.

3. Az ion –szilárd test kölcsönhatások számítógépes modellezése

Az energetikus ionok és a szilárd test között lejátszódó folyamatok kísérletileg meghatározott trendjét nagyon jól leírja a Boltzmann transzport egyenlet megoldásain alapuló analitikus elmélet [21, 28], de alkalmazása tényleges mintákra nagyon bonyolult (ha egyáltalán lehetséges) ezért fejlesztették ki a számítógépes szimulációkat. Az első ilyen szimulációk fejlesztése kicsivel több, mint 50 éve kezdődött. Bredov és Goldman egymástól függetlenül [9] kezdtek el Monte Carlo szimulációt alkalmazni behatolás és porlasztás számolására. Már akkoriban a II.2. (13 – 15 old.) fejezetben leírt páros (bináris) ütközés – közelítést (BCA) alkalmazták az „ion – atom” kölcsönhatás modellezésében. Nem sokkal később Gibson [25] a sugárkárosodás leírására molekula dinamikai (MD) számításokat kezdett alkalmazni. Ezzel kialakult az ion - szilárdtest kölcsönhatás leírásának ma is érvényes két fő iránya. A BCA közelítést alkalmazó Monte Carlo módszer gyors és így gyakorlati problémák esetében is alkalmazható; ezért kísérleteink kiértékeléséhez ezeket fogjuk alkalmazni. Ugyanakkor a számos alkalmazott közelítés miatt megbízhatóságuk nem nagy és így ellenőrizni kell az eredményeket. A forgalomban lévő MD módszerek általában félempirikus potenciálokat használnak, ezzel igen sok tulajdonságot igen pontosan leírnak. Mivel egy adott kis térfogatban felépített kristályban egyszerre több atom pillanatnyi sebességét és helyzetét számítják ki a mozgásegyenletekből, ezért a számítási igény nagyon nagy; egy klasszikus porlasztási folyamat, amikor eltávolítunk néhány nm anyagot még nagy erőforrású számítógépeken is igen hosszú időt igényel. Így ezt a módszert jelenleg inkább csak a folyamatok jobb megértéséhez tudjuk csak használni [22, 23].

A munkám keretén belül két ionbombázás által okozott hatást vizsgáltam: a porlasztást és az atomi keveredést réteges szerkezeteken. A vizsgált folyamatok előrejelzésére két általánosan ismert BCA közelítésre épülő Monte Carlo szimulációs programot (kódot) alkalmaztam. A porlasztási hozam számítógépes meghatározására a J. F. Ziegler, M.D. Ziegler és J. P. Biersack által fejlesztett SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) programot alkalmaztam [8]. A SRIM program szerves része a J. P. Biersack és W. Eckstein által leírt TRIM.SP (TRANsport in Matter: SPuttering) kód mely az anyagok porlasztását írja le. Az ionindukált atomi keveredés leírására viszont a W. Möller és W. Eckstein által kifejlesztett dinamikusán változó összetételű céltárgyra alkalmazható TRIM kód továbbfejlesztett változatát a TRIDYN Monte Carlo kódot alkalmaztam [24].

3.1. A TRIM.SP kód rövid áttekintése

Ez a kód Monte Carlo szimuláción alapul. A Monte Carlo szimulációk lényege, hogy a fizikai kísérlet tényezőihez véletlen számot rendelünk egy adott eloszlásfüggvény alkalmazásával. Többnyire 3 változó van, amit a BCA közelítésnél véletlenszerűre kell választanunk: 1. az egymást követő ütközések közötti távolságot, 2. a kölcsönhatási paramétert, 3. poláris koordináta-rendszerben a szórás irányszögét.

Az egymást követő ütközések közötti távolság λ kétféle módon definiálható [25]:

a) folyadék modell $\lambda = \lambda_0$, ahol $\lambda_0 = N^{-1/3}$ így $f_l(\lambda) d\lambda = \delta(\lambda - \lambda_0) d\lambda$

b) gáz modell, itt $f_l(\lambda) d\lambda = N\sigma_t e^{-N\sigma_t \lambda} d\lambda$,

ahol N a céltárgy atomok sűrűsége, σ_t a teljes szórási hatáskeresztmetszet és λ_0 az átlagos távolság az első ütközésig. Ennek megfelelően a maximális kölcsönhatási paraméter $p_{max} = (\pi\lambda N)^{-1/2}$, vagyis minden atomi térfogatban történik egy ütközés. Ez a BCA alapvető problémája, hogy ezzel alulbecsüli a nukleáris energiavesztést, ezáltal esetlegesen túl nagy lesz a meglökések (recoil) száma és a porlasztási hozam is. Az említett probléma miatt több program is inkább megfelel a két ütközés közötti szabadút hosszát, azaz $\lambda = 0.5N^{-1/3}$ -val számol. A TRIM.SP program a folyadék modellt alkalmazva három dimenzióban követi a bombázó ionok és a megütött atomok mozgását.

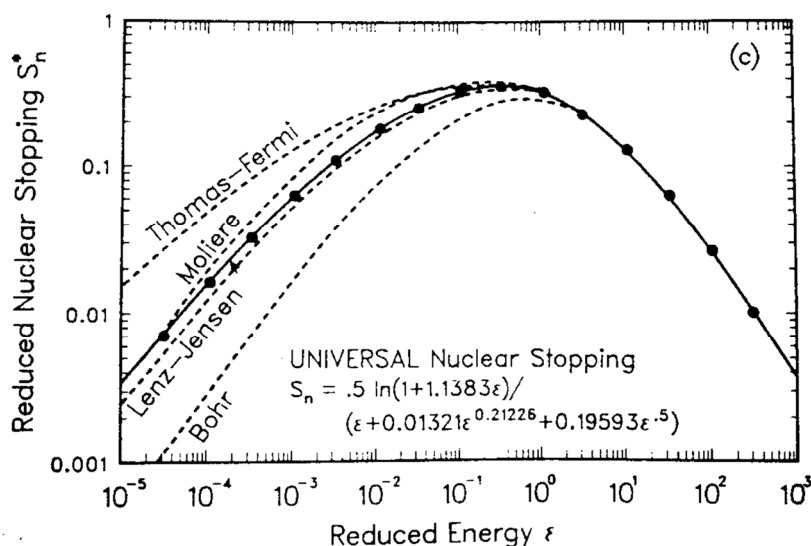
A megütött atomok szempontjából a program megkülönböztet elsődlegesen meglökött atomokat (PKA) és másodlagosan meglökött atomokat (SKA). Ha egy céltárgy atom ütközés következtében egy előre megadott energiaértéket (ez legtöbbször az áthelyezési energia) meghalad, akkor beszélünk elsődlegesen meglökött atomról. A következő ütközés ugyanilyen feltételekkel már másodlagosan meglökött atomot eredményez. Az ion és a meglökött atomok követési folyamat akkor áll le, ha a kapott energia az előre definiált érték (felületi kötési energia) alá esik, vagy a meglökött atom távozik a céltárgyból.

Az ionok szóródása a céltárgy atomokon nem csak a lassulás és az eltérülés szempontjából fontos folyamat, de mert meghatározza még a meglökött atomoknak átadott energiát, amely a roncsolódásért és a porlasztásért is felelős. Ezt az energiát már megadtuk a (9) egyenletben, amiből megkaphatjuk a nukleáris fajlagos fékezési energiát különböző kölcsönhatási potenciálok esetében, ezt láthatjuk az 9. ábrán [26]. A nukleáris fajlagos fékezési energia pedig, mint tudjuk közvetlenül arányos a porlasztási hozammal [31]. Azt is láthatjuk az ábra alapján, hogy a munkámban előforduló redukált energiáknál kezdenek el szétválni a különböző kölcsönhatási potenciálok alapján számolt görbék. Így látjuk, hogy fontos lenne a programban a kölcsönhatási potenciál jó megválasztása.

Egy másik fontos tényező az ilyen típusú szimulációkban a szórási szög számítása. Korábbi programokban ezt a klasszikus szórási integrálból számították numerikusan, ez elég pontos, de túlságosan erőforrás igényes folyamat volt. Egyéb programok analitikus megközelítésből durvább közelítésekkel számoltak, melyeknek nagy hátránya volt, hogy nehéz ionok és kis energiák esetén nem működtek. A TRIM program egy analitikus megnövelt pontosságú képletet alkalmaz, melyet gyakran „Mágikus formula” néven emlegetnek. Ezt egy egyszerű geometriai megfontolásokon alapuló megközelítés teszi lehetővé. Ez egy háromszög, amely egy adott P kölcsönhatási paraméterből, a legkisebb megközelítési távolságból r_0 és a ρ görbületi sugárból áll, melyet az $E(r_0)$ kinetikus energia és taszító erő határoz meg. Mindezt egy kis δ korrekciós faktorról egészítik ki a következő módon:

$$\cos \theta = \frac{P + \rho + \delta}{\rho + r_0}, \quad (18)$$

ahol $\cos \theta$ a szórási szög a tömegközépponthez kötött koordináta rendszerben.

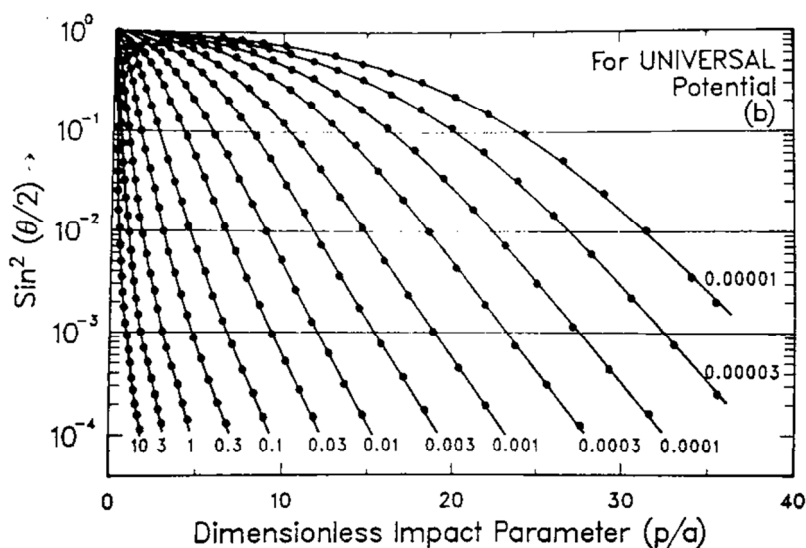


9. ábra: Különböző módon számított nukleáris fajlagos fékeződési energia a redukált energia függvényében. Szaggatott – különböző potenciáltípusokkal a hagyományos szórási integrállal számítva; pöttyök – univerzális potenciállal számolva a szórási integrál megoldásával; vonal – az ábrán közölt egyenlettel számolva (TRIM) [26].

A 10. ábrán láthatunk egy összehasonlítást melyen a „Mágikus formula” segítségével számolt szórási szögeket és a szórási integrál közvetlen megoldásából eredő pontok vannak feltüntetve adott redukált energia értékek mellett. Láthatjuk, hogy egybeesnek az eredmények.

Megbízható eredmények érdekében, különösen alacsony energiájú ionok esetére, döntő fontosságú a megfelelő taszító potenciál alkalmazása. A TRIM program erre a legegyszerűbb II. fejezet (5) egyenlettel leírt Coulomb potenciált alkalmazza, egy úgynevezett

univerzális árnyékoló függvénnyel [26]. Ennek kiválasztása előző munkákra épül, mégpedig összehasonlításokra kísérleti és többféle potenciállal számolt eredmények között. A munka szempontjából érdekes megjegyezni, hogy optimalizálás miatt a program különböző módon számol kis és nagy energiájú ütközéseknél. Amíg a redukált energia $\varepsilon < 10$ addig a program a szórási szöget a „Mágikus formula” és a fékezést pedig az univerzális árnyékolási függvénnyel korrigált Coulomb potenciál alkalmazásával számolja. Nagyobb energiáknál a szóródás és az energiacsere túl közel zajlik a céltárgy atom magjához, így az árnyékolás nagyon kicsi. Ilyen esetben célszerűbb a normál $1/r$ viselkedéstől egyre erősebb r függést bevezetni azaz $r^{-1.5}$ vagy akár r^{-2} típusút.



10. Ábra: A szórási szög függése a redukált energiától ε és az árnyékolási hosszra vonatkoztatott kölcsönhatási paramétertől; pöttyök – szórási integrál analitikus megoldásai, vonalak – a „Mágikus formula” eredményei [26].

A bombázó ionok elektronos fékeződését is figyelembe veszi a program. Ekkor a II. fejezetben a (17) egyenlettel leírt Lindhard – Scharff modellt alkalmazza. Mindkettő, a kölcsönhatási potenciál és az elektronikus fékezési hatáskeresztmetszet tökéletesítése nagymértékben javítja a program pontosságát. Az ütköztetési paraméterek (nehéz ion, kis energia) befolyásolják a két fékeződési folyamat súlyát. Egy másik fontos közelítés, hogy a céltárgyban mozgó ion két ütközés között szabadon mozog, és csak ütközéseknél veszít energiát.

A (18) képlettel számított θ szórási szöget a további számításokban könnyebb értelmezni, ha azt a céltárgyhoz kötött polárkoordináta – rendszerben adjuk meg. Ennek megfelelően az új szórási szög ψ lesz:

$$\psi = \tan^{-1} \left(\frac{\sin \theta}{\cos \theta + M_1/M_2} \right), \quad (19)$$

Ebben a koordinátarendszerben az ion pálya irányának háromdimenziós meghatározásához szükség van még az azimuth szögre φ melyet a program $0 \div 2\pi$ tartományban véletlenszerű sorsolással választ ki amorf anyagokra.

A TRIM. SP kód jelenleg a SRIM (The Stopping and Range of Ion in Matter) nevű J.F. Ziegler, M.D. Ziegler és J.P. Biersack által fejlesztett program része. A program finomítása folyamatos; jelenleg már elérhető a 3D ionpályák ábrázolása és a monorétegenkénti ütközések számítása [8]. A folyamatos fejlesztés folyamatos kísérleti ellenőrzést igényel.

3.2. Dinamikusan változó összetételű céltárgy – TRIDYN kód

Az előző fejezetben leírt TRIM program a céltárgyat minden ionbecsapódásnál változatlan összetételűként értelmezi. Ebben az esetben csak kis dózisok esetén kaphatunk pontos eredményt. Ugyanakkor, nagyobb dózisoknál jelentős átrendeződések mennek végbe az ionbombázás hatására az anyag belsejében, ez lokális koncentrációváltozásokhoz hibahely felhalmozódáshoz. Ráadásul, a magasabb koncentrációban felhalmozódott bombázó (implantálódott) ionok is jelentős szerepet játszhatalnak az ütközési kaszkádok kialakításában.

A TRIDYN kód a TRIM kódból már jól ismert közelítéseket alkalmazza a bombázó ion és a meglökött atomok kölcsönhatásának modellezésére. A céltárgy dinamikus fejlődését (összetétel változását) viszont a program a céltárgy N darab Δx vastagságú rétegre bontva kiszámítja a teljes dózisból erre a rétegre jutó $\Delta\varphi$ dózist:

$$\Delta\varphi = \varphi_0/N_H, \quad (20)$$

ahol φ_0 a teljes dózis, N_H a pseudobehatolók száma. A $\Delta\varphi$ hatására, minden i típusú atom elmozdulása vagy eltávazása a Δx vastagságú rétegben $v_{i,j}$ lokális sűrűségváltozást okoz. Miután egy pseudobehatoló útja véget ér minden réteg összetétele $q_{i,j}$ ujraszámolódik, azaz:

$$q_{i,j} = v_{i,j}/\sum_{k=1}^3 v_{k,j}, \quad (21)$$

Mivel előfordulhatnak fizikailag lehetetlen sűrűségértékek, ezért minden rétegben a teljes n_j sűrűség j irányban relaxálhat egy Littmark és Hoffer [27] által felírt közelítés alapján. A közelítés alapján számolt az ionbombázás hatására megváltozott n_j sűrűségből kapjuk a megváltoztatott réteg Δx_j vastagságát:

$$\Delta x_j = \sum_{k=1}^3 v_{kj} n_{k0}^{-1}, \quad (22)$$

Egy új ion behatolása előtt a (22) egyenlettel számított új, az előző ion által megváltoztatott szerkezet ismételten felosztódik az eredetileg beállított Δx vastagságú szakaszokra.

A fenti eljárás persze a porlasztás és az átrendeződés eredményeképpen a minta folyamatos fogyását (Δr) eredményezi, melyet egy behatoló ionra vonatkoztatva így kapunk:

$$\Delta r = N\Delta x - \sum_{j=1}^N \Delta x_j, \quad (23)$$

Láthattuk tehát, hogy a TRIM kóddal ellentétben a TRIDYN program figyelembe veszi minden egyes ion behatolása következtében végbemenő összetétel változásokat és a minta időbeli fogyását. Ezt az anyagfogyást a program visszatáplálja a minta alján és így a teljes vastagság megmarad. A programban sok kezdeti paraméter változtatható, úgymint felületi kötési energia, a koncentráció relaxációjának típusa, a bombázott anyag kezdeti sűrűsége, stb. Nagy előny, amit a munkám keretén belül kihasználtam, a kezdeti szerkezet szabad választása.

1. Auger elektron spektroszkópiai (AES) mélységi feltérképezés

1.1. Auger elektron spektroszkópia (AES)

Pierre Auger francia fizikus röntgensugárzással gerjesztett argon atomok gerjesztési folyamatainak Wilson – féle ködkamrában történő tanulmányozása folyamán fedezte fel a róla elnevezett effektust 1925-ben. Ezt követően csak kb. 40 év után kezdődött el az AES módszer széleskörű gyakorlati felhasználása. Napjainkban az AES módszert elsősorban szilárdtest felületek vizsgálatára alkalmazzák. Ennek folyamán a vizsgálandó felületet valamilyen primer gerjesztés hatásának tesszük ki, ami elsősorban 1 – 10 keV-os elektronnyalábbal való bombázást jelent, de elektromágneses sugárzás vagy ionnyaláb is lehet a gerjesztő hatás. Az ekkor végbemenő Auger – folyamatot az 11. ábrán szemléltetjük, és az alábbiak szerint értelmezzük. Ha egy belső elektronhéjon valami miatt elektron hiány alakul ki, akkor bekövetkezhet az Auger effektus. Ekkor két kisebb kötési energiájú elektron szimultán módóni rekombinációval csökkenti az atom energiáját úgy, hogy az egyik betölti a nagy energiájú lyuk helyét, míg a másik kilöködik az atomból. A most már kétszeresen ionizált atom energiája kisebb, mint az eredetileg egyszeresen ionizált atomé, mert a lyukak külső kisebb kötési energiájú héjakra kerülnek. A kilökött elektront nevezzük Auger – elektronnak. Az Auger effektus és a sugárzásos rekombináció versengő folyamatok. Ököl szabályként azt mondhatjuk, hogyha a rekombinációban felszabaduló energia 1000 eV alatt van, akkor az Auger rekombináció valószínűbb, míg ha ezen energiánál több szabadul fel, akkor sugárzásos rekombináció valósul meg. Mivel a külső héjakból ez az energia mindig elérhető az összes elem, amiben van legalább három elektron megfelelő gerjesztéssel Auger elektron emittálhat.

Egy tetszőleges, W X, és Y elektronhéjak által megvalósított Auger folyamatban keletkező Auger – elektron $E_{W,X,Y}(Z)$ energiája függ az elektronhéjak E_W , E_X és E_Y ionizációs energiáitól, amik persze függnék az illető elem Z rendszámától. Figyelembe kell azonban venni, hogy:

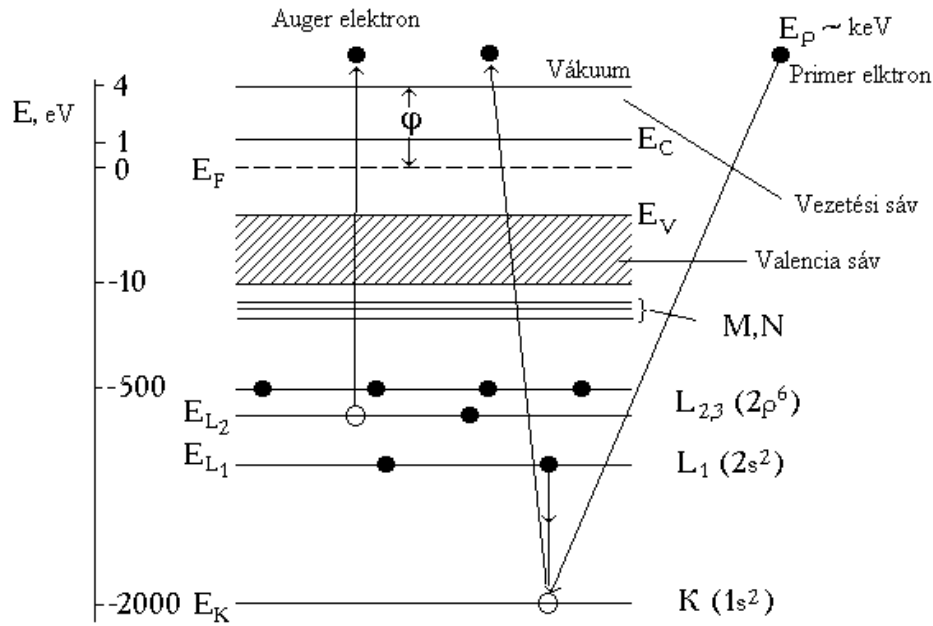
- a.) Az E_W , E_X és E_Y értékek az egyszeresen ionizált állapothoz tartozó ionizációs energiák, míg az Auger – folyamatnál a végső állapot kétszeresen ionizált.
- b.) A szilárdtesteknél az elektronnak a vákuumba való vitelekor az energiamérlegnél figyelembe kell venni az elektron kilépési munkáját (ϕ) is.

c.) A mátrix – környezet megváltozása esetén az atomok elektronállapota változik. Emiatt az Auger elektronok energiája és spektruma is más lesz.

Ezeket a szempontokat figyelembe véve, az Auger – elektron energiája az alábbi félempirikus összefüggéssel adható meg:

$$E_{wxy}(Z) = E_W(Z) - E_X^*(Z - 1) - E_Y^*(Z - 1) - \varphi, \quad (24)$$

ahol a * azt jelenti, hogy az atom ionizált állapotban van és ennek megfelelően az energia nívók helyzete megváltozik. Megjegyezzük, hogy a töltésszám korrekciója is egy gyenge közelítés. Ezért a (24) képletben kiszámítható energia csak tájékoztatásra használható.



12. ábra: Az Auger folyamat szemléltetője elektrongerjesztés esetén

Az alábbiakban ismertetjük az elektron hozamot meghatározó tényezőket. Legyen az i elemben a WXY Auger – átmenetnél keletkező, és a $\Delta\Omega$ térszögű akceptancia (fogadó) nyílással rendelkező AES berendezés által detektált Auger elektronáram $I_i(WXY)$.

Ekkor első közelítésben:

$$I_i(WXY) = \frac{\Delta\Omega}{4\pi} \int_0^\infty I_p(z) \cdot P_i(WXY) \cdot \sigma_i(E_w) \cdot N(z) \cdot X_i(z) \cdot F(\alpha) \cdot T(E_{wxy}) \cdot D(E_{wxy}) \cdot \exp\left[\frac{-z}{\lambda_i \cos \alpha}\right] dz, \quad (25)$$

ahol I_p a gerjesztő áramerősség z mélységben, $P_i(WXY)$ annak a valószínűsége, hogy a gerjesztett i atomok W – héjának ionizációja után Auger – folyamat következik be, $\sigma_i(E_w)$ a W - héj ionizációs hatáskeresztmetszete, $N(z)$ a z mélységben lévő atom sűrűség, $X_i(z)$ az i elem atomi koncentrációja z mélységben, $F(\alpha)$ az emissziós szögtől függő felületi érdességi

faktor, λ_i az i elemből kilépő Auger elektron átlagos rugalmatlan szabad úthossza, $T(E_{wxy})$ az elektron energia analízátor átviteli függvénye, $D(E_{wxy})$ az elektron sokszorozó erősítése.

A (25) egyenletből láthatjuk, hogy a mintából kilépő Auger elektronok árama függ a mintában adott mélységben lévő atomi koncentrációtól. Az egyenletben szereplő paraméterek bonyolultsága miatt sokszor (25) egyenletet nehezen indokolható közelítésekkel oldják meg. Feltételezik pl., hogy a koncentráció nem függ a mélységtől. Ekkor az integrálás könnyen végrehajtható és az elemek atomi koncentrációját referencia spektrumok felvételével az úgynevezett relatív érzékenységi tényezők módszerét [55] alkalmazva tudjuk kiszámítani.

Ebben a módszerben az i elem koncentrációját X_i a mintából kijövő mért I_i elektronáram és a tiszta i anyagból származó I_i^∞ elektronáram ismeretében következőként számíthatjuk ki:

$$X_i = \frac{I_i / (I_i^\infty / I_r^\infty)}{\left[\frac{I_i}{(I_i^\infty / I_r^\infty)} + \frac{I_j}{(I_j^\infty / I_r^\infty)} + \dots \right]}, \quad (26)$$

ahol $\left(\frac{I_i^\infty}{I_r^\infty} \right)$ arányt nevezzük az i anyag relatív érzékenységi tényezőjének, I_i^∞ az az Auger elektron áram, amit tiszta i anyagban mérnénk, I_r^∞ pedig a referenciának választott anyagból származó Auger elektron áram. A relatív érzékenységi tényezőket általában adott kísérleti berendezésre megtalálhatjuk kézikönyvekbe foglalva [65]. Mivel a mi mintáink váltakozó egykomponensű anyagból álltak, ezért itt minden esetben belső referenciaként használva ezekből emittált intenzitásokat számoltunk ki relatív érzékenységi tényezőt. Ez előnyös, mert kizárja azt a hibát, hogy a kézikönyvben közölt spektrumok felvételéhez esetlegesen alkalmazott elektron energia analízátor más átviteli függvénnyel rendelkezett. A felvett Auger elektron spektrumokat tradicionálisan derivált formában kezeltük. Így az I – intenzitásokat az adott elem derivált spektrumán a maximum – minimum helyek közötti szintkülönbséggel jellemeztem minden esetben.

1.2. Mélységi feltérképezés (profilírozás)

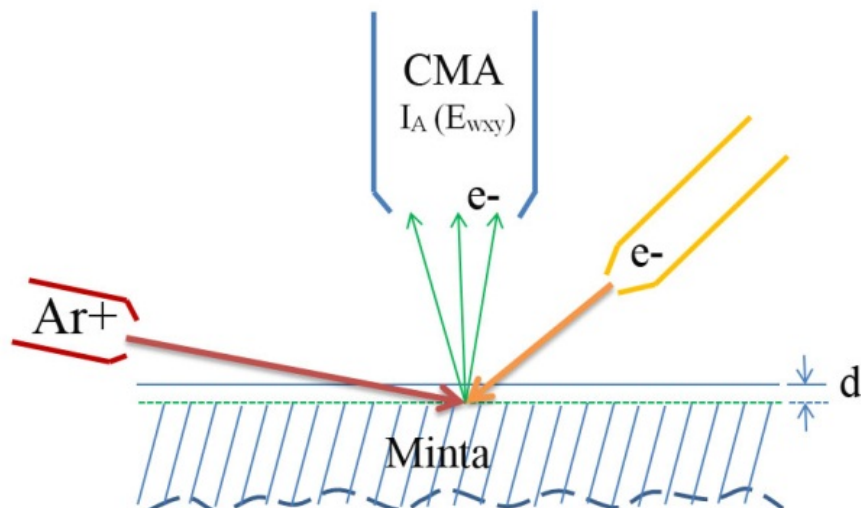
Az AES csak a vizsgált anyag legfelső 1 – 2 atomsornyi vastag (az Auger elektronok rugalmatlan szabad úthossza) rétegről ad információt. Abban az esetben, ha a vizsgált minta mélyebb rétegeiről is információt szeretnénk kapni valahogyan le kell hámoznunk a már megvizsgált felső réteget. Regisztrálva az Auger elektron spektrumok intenzitásait

minden adott vastagságú réteg eltávolítása után megkapjuk az detektált elemek mért mélységbeli atomi koncentráció eloszlását. Ha az elemek igazi eloszlása az Auger elektronok haladási csillapítási hosszán [56] belül (1 – 3 nm) erősen változik, akkor nem alkalmazhatjuk az egyszerű, relatív érzékenységi tényezők módszerét a koncentrációsámításnál. Ebben az esetben az igazi mélységi elemeloszlást számításánál figyelembe kell vennünk az elektronok véges csillapítási úthosszát. Az előbbire megoldásként a Menyhárd által kifejlesztett „próbálgató” módszert [81] szoktuk alkalmazni.

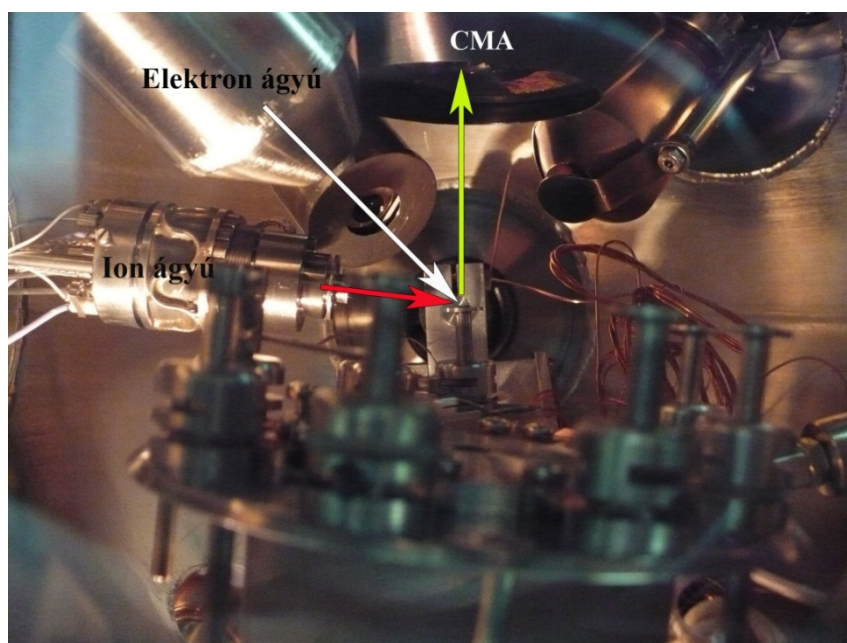
Mivel régóta ismerték az ionporlasztás jelenségét, ezért a hámozást ionbombázással próbálták megoldani. Ezt már az AES, mint analitikai technika megjelenése után elkezdték alkalmazni. Ebben az esetben mindvégig nagy problémát jelentettek az ionbombázás okozta változások a vizsgált anyag felületi rétegeiben. Igazi áttörést az utóbbi 20 évben a kísérleti protokoll megváltoztatása hozta meg. Az első ilyen változtatás volt a felületi morfológiafejlődés (felületi durvulás) visszaszorítására a Zalar [42] által 1985 – ben bevezetett porlasztás közbeni mintaforgatás. A mélységi felbontás jelentős javulását eredményezték még a Barna Árpád és Menyhárd Miklós által bevezetett újítások. Barna 1984 – ben publikálta a sűrűlő szögű ionbombázás alkalmazását leíró munkáját, amely szintén az ionbombázás indukált felületi durvulás visszaszorítása érdekében tett nagy lépéseket. Barna és társai az ionbombázás indukált atomi keveredést vizsgálva rájöttek, hogy csökkentve az ionok energiáját csökken az atomi keveredés által okozott mélységi felbontás romlása [105]. Alkalmazva a fentebb felsorolt változtatásokat a jelenleg elért legjobb mélységi felbontás 1 nm [106].

1.3. Kísérleti berendezésünk

Kísérleti elrendezésünket a 12. ábrán látható vázlatos rajz szemlélteti. Saját fejlesztésű berendezésünk belső elrendezését pedig a 13. fotón láthatjuk. Az Auger elektrongerjesztéshez egy mikrofókuszú STAIB EKM 10 gyártmányú 5 kV gyorsító feszültségre beállított elektronágyút alkalmaztam. Az elektronáramunk kísérlettől függően a 20 – 100 nA tartományban változott. A gerjesztett terület átmérője általában nem haladta meg az 50 μm . A minta felületéről kilépő Auger elektronok intenzitás – energia eloszlás görbét egy STAIB DESA100 gyártmányú előfékezőes hengertűkör analízátor (CMA) segítségével regisztráltam, melynek relatív energiafelbontása $\Delta E/E=0.6\%$ volt.



12. ábra: AES mélységi feltérképezés elvi vázlatrajza elektrongerjesztés esetén



13. ábra: Az MTA MFA Vékonyréteg fizikai osztályán lévő AES mélységi profilírozó belső elrendezése

A 13. ábrán látható konstrukcióban a minta döntésével állíthatjuk be az ionbombázás beesési szögét $\sim 40^\circ - 88^\circ$ tartományban. A munkám során a minták porlasztás közben minden esetben forgatva (4 – 6 fordulat/perc) voltak. Korábbi vizsgálatainkból kiderült, hogy az ionbombázás energiájának csökkentésével csökken a roncsolódás mértéke. Ugyanakkor kis ionenergiák ($\sim 300 - 500$ eV) mellett nagymértékben csökken a porlasztási sebesség is. Ezért tapasztalataink alapján elfogadható porlasztási sebesség / ionindukált roncsolódás arányt tudunk elérni 1 keV energiájú ionbombázással. Így munkámban minden esetben 1 keV energiájú Ar^+ ionokat alkalmaztam.

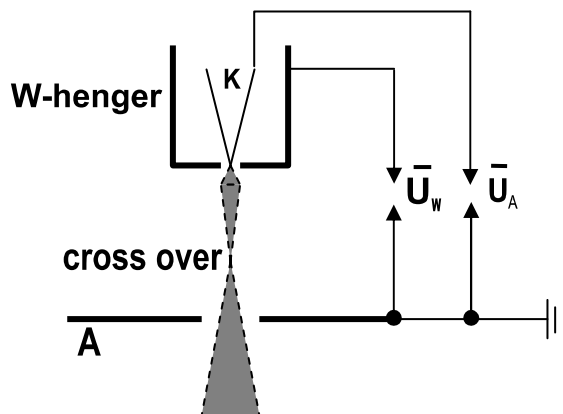
2. Transzmissziós elektronmikroszkópia (TEM)

A transzmissziós elektronmikroszkópia (TEM) a modern anyagtudomány egyik elengedhetetlen vizsgálati módszere. Alkalmazási területei: vékonyréteg kutatás, orvosi – biológia, ásványkutatás, stb. A dolgozatban főként a vékonyréteg rendszerek egyes rétegeinek szerkezetéről és vastagságáról kapott információ volt felhasználva.

2. 1. A mikroszkóp főbb alkotóelemei és működése

Megvilágító rendszer – elektronforrás

Az oszlop tetején helyezkedik el az elektronforrás, melynek vázlatos rajzát az 14. ábra mutatja. Termikus katód esetében az elektronokat fűtött W vagy LaB_6 katódból nyerjük, melyet a $\sim 500\text{V}$ negatív potenciálon lévő Wehnelt – henger burkol. A gyorsító feszültség 100 és 400 kV között van, melynek értékét 10^{-5} relatív ingadozáson belül kell stabilizálni. A Wehnelt – henger után helyezkedik el középen lyukas anód, amely földpotenciálon van. Az elektronforrás alatt található a kondenzor – rendszer, melynek feladata a minta megvilágítása koherens elektronnyalábbal. A foltméret és a konvergencia szabályozása is a kondenzor – rendszerrel valósítható meg. Általában két kondenzor lencséből (elektromágneses) és több fix és egy változtatható blendéből épül fel.

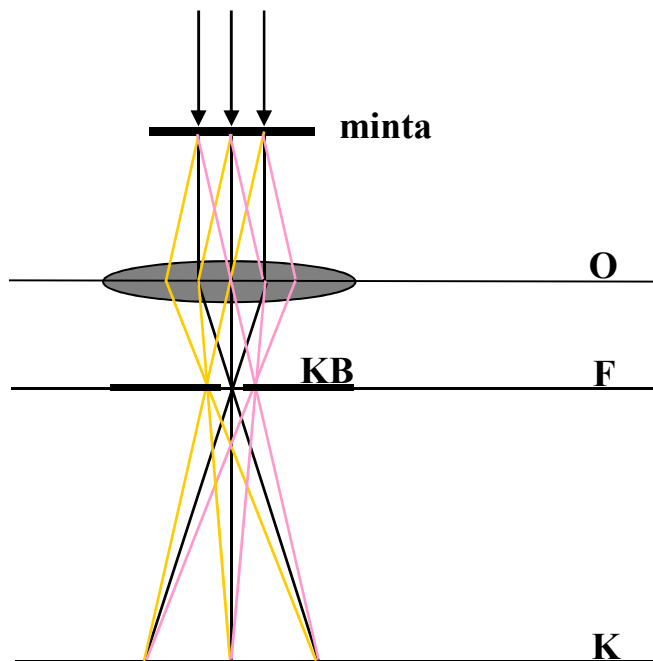


14. ábra: A mikroszkóp forrásának vázlata

Képkötő rendszer

A 20 – 100 nm vékony mintán az elektronok egy része irányváltoztatás nélkül másik része pedig szórászt szenvedve halad át. A képkötőt az 15. ábra szemlélteti. Jól látható hogy az objektív lencse a minta különböző területein azonos szögben elhajló sugarakat az F – fókuszszíkon egy pontban gyűjti össze.

Az első nagyítást is az objektív lencse (OL) végzi el, melynek értéke 20-50 szerez. Így 1-2mm fókusz távolságra kialakul a diffrakciós kép, mely a minta Fourier transzformáltja.



15. ábra: Képkötés. O-objektív lencse, F-fókuszszík, K-képsík, KB-kontrasztblende.

A KB-kontrasztblende segítségével kiválaszthatjuk az elhajlott sugarak közül azt, amelyikkel a továbbiakban képet készítünk. A kiválasztott sugár által alkotott képet egy több lencséből álló elektronoptikai rendszer képezi le a rögzítésre – megfigyelésre alkalmas eszközre, jelentős nagyítással (10 – 100000-szeres). Jelenlegi, korszerű nagyfeloldású mikroszkópokban az objektív lencse és a vetítőrendszer össznagyítása meghaladja a 10^6 - szorost, így elérhető a 0.1nm körüli felbontás. A legfontosabb felbontást befolyásoló paraméterek közé tartoznak a következők: Airy féle elmosódás, a lencsehibák (főként szférikus aberráció), a minta vastagsága (jelentős rugalmatlan szórás). Optimális, ha a gömbi hiba által megszabott és a fizikai felbontási határ egybeesnek [107].

2. 2. Képi üzemmódok

Az elektronok hullámtermészetét tekintve a TEM – ben használatos energiák mellett nagyon rövid hullámhosszú ($\lambda=0.0038$ nm/100 keV) koherens megvilágítást kapunk, amely a szerkezetvizsgálatot teszi lehetővé. A mindennapos használat (a dolgozatban is) során leggyakrabban a világos vagy sötét látóterű üzemmódot használjuk. Ezeknél a kontrasztblendével általában egy erősebb szórt vagy direkt sugarat választunk ki, és azzal készítünk képet.

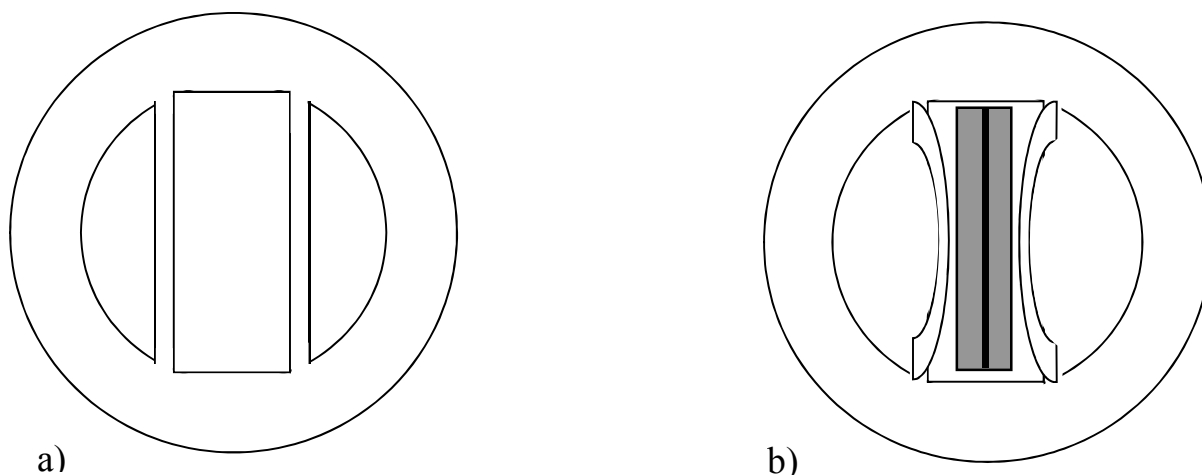
Világos látóterű esetében a képalkotásban azok az elektronok vesznek részt, melyek a mintán áthaladva nem térültek el. A sötét látóterű kép beállításánál a diffrakcióból egy szórt nyalábot választunk ki a képkészítéshez. Sötét látóterű kép esetében a lencsehibák hatásának csökkentése érdekében célszerűbb valamilyen mértékben eltolni a diffrakciós képet. Ezt a kiválasztott diffraktált nyaláb optikai tengelyhez való közelítésével tehetjük meg. A megvilágítás ideális esetben párhuzamos nyalábbal történik, de nem okoz gondot, ha a nagyobb fényerő elérése végett kismértékű konvergenciát alkalmazunk.

Nagyfelbontású (HRTEM) képkészítésnél különösen fontos a kinematikus elmélet feltételeinek teljesítése, azaz túlnyomó részben csak rugalmas szórás történhet, ami korlátot jelent a mintavastagságra. A másik alapfeltétel, hogy a leképzőrendszer ne rontsa az interferenciából eredő hatásokat. Nagyon fontos még az OL kontraszt átviteli függvényének (CTF) ismerete a nagyfeloldású képek értelmezésében.

3. 3. TEM mintakészítés

Az általam felhasznált TEM eredmények mindegyikénél a minták ionsugaras keresztvékonyítással készültek. Vékonyításhoz minden esetben a Technoorg Linda által gyártott ionsugaras vékonyítót használták.

Közvetlen mintatartóként az 16. ábrán látható Ti gyűrűt alkalmazzák. A feldarabolt mintát a gyűrűben lévő téglalap alakú kivágásba ágyazzák hőre kötő grafit alapú ragasztóval. A ragasztó segíti a vezetőképeséget és stabil (tartós) az ionsugárral szemben. A ragasztás után mechanikai vékonyítás következik mindkét oldalról. A végső polírozás után a minta vastagsága általában 50 – 100 μm .



16. ábra Minta előkészítése mechanikai és ionsugaras keresztvékonyításhoz: a) üres Ti-gyűrű, b) beszorított szembefordított minták.

A mechanikai vékonyítás után következik az ionsugaras vékonyítás. Ezzel a módszerrel lehet a minta vastagságát 20 – 100 nm- re csökkenteni. A felületet érő ionsugár nem jelent közvetlen mechanikai terhelést, de jelentős hőterhelést igen (a minta vékonyabb részein akár több száz fokkal nagyobb hőmérséklet). A hőterhelés során kialakuló belső feszültségek viszont repedéseket okozhatnak a mintán. A bombázó Ar^+ ionok energiája 10 keV és árama néhány tíz μA . Ilyen energián a súrlódó ($82^\circ - 86^\circ$) beesés ellenére is roncsolódik (amorfizálódik) az elkészített minta felülete. Így célszerű az ionsugaras vékonyítást kisebb 0.2 – 2 keV energiájú ionokkal befejezni. Az alacsony energiás porlasztás megvédi a visszaporlódott (lerakódott) anyagtól is. A súrlódó beesés és a minta forgatása a felületi durvulását akadályozza meg, így kevésbé kell tartanunk a mintán zavaró kontrasztot adó durvaságtól.

A dolgozatban felhasznált TEM és HRTEM felvételek egy Philips CM20 200kV (0.27 nm pontfelbontás, 0.14 nm rácsfelbontás), illetve egy JEOL3010 300kV (0.17 nm pontfelbontás, 0.14 nm rácsfelbontás) gyorsító feszültségű mikroszkóppal készültek.

3. Atomi erőmikroszkópia (AFM)

3. 1. Az AFM általános leírása és főbb részei

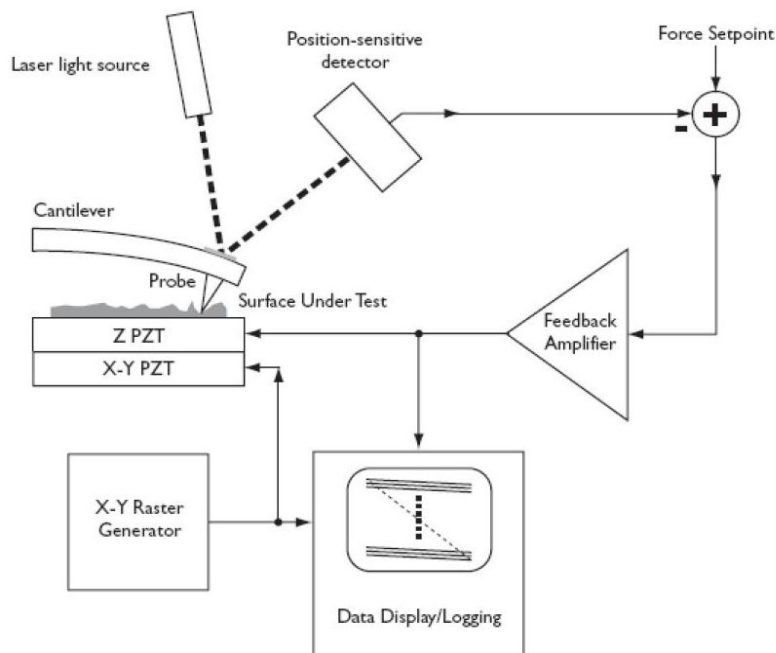
Az Atomi Erőmikroszkóp egy pásztázó, képalkotó és érzékelő eszköz. A klasszikus mikroszkópokhoz nem sok szál fűzi, de mivel a felületen mért atomerő térkép képpé alakítható, ezért nevezhetjük mikroszkópnak.

Az AFM technikát G. Binnig és C.F. Quate alapozták meg 1986 munkájukban [108]. A Pásztázó Alagútmikroszkóp (STM) és a „stylus profilometer” kombinációjával sikerült egy új technikát kidolgozni, amely képes volt megmérni a tűhegy és a felületi atomok között ható $\sim 10^{-8}$ N nagyságrendű erőt (*van der Waals* erők). Legnehezebb feladatnak tűnt olyan rugóslemez elkészítése, amely a legnagyobb elhajlást adja ilyen kis erők mellett. Ugyanakkor a másik oldalról meg olyan merev rugóslemez szükségeltetik, melynek a sajátfrekvenciája ~ 100 Hz, az épületrezgések által okozott zaj kiszűrése végett. A rugóslemez rezonancia frekvenciája a következővel adható meg:

$$f_0 = \left(\frac{1}{2\pi} \right) \times \left(\frac{k}{m_0} \right)^{1/2}, \text{ ahol } k - \text{rugóállandó, } m_0 - \text{a rugót terhelő effektív tömeg;}$$

Ha csökkentjük k –értékét a rugó puhítása érdekében, akkor m_0 – át is csökkentenünk kell, hogy a k/m_0 arány nagy maradjon. Mikro megmunkálás segítségével 10^{-10} kg tömegű és 2 kHz sajátfrekvenciájú rugóslemez készíthető [14]. STM – el lehetséges 10^{-4} Å elmozdulás mérése, ha moduláljuk az alagutazás szakaszát. Az erő, ami ilyen elmozduláshoz szükséges $2 \cdot 10^{-16}$ N, ha a rugóslemez a sajátfrekvenciáján rezeg, akkor ez az erő 2 nagyságrenddel kisebb. Az első AFM levegőn 30 Å laterális és 1 Å vertikális felbontást tudott elérni.

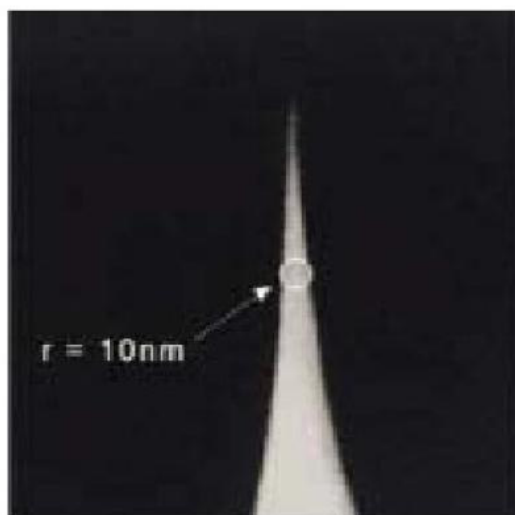
A jelenlegi konstrukció sokban változott, a modern számítógépes vezérlés miatt kezelhetőbb lett. A rugóslemez pozícióját ma már lézer – optikai megoldással mérik. Sokat fejlődött a mintamozgató rendszer, a rezgésmentesítő és egyéb új technikai megoldások kerültek megvalósításra. Egy mai AFM vázlatát a 17. ábra szemlélteti.



17. ábra: Az AFM általános modern elrendezésének vázlata.

A tű és a rugólemez

Az AFM lelke a tű és az őt tartó rugólemez, amely nagyban befolyásolja a mikroszkóp felbontását. A ma forgalomban lévő általános tű és tartólemez kellékek többsége szilícium vagy szilícium – nitrid. A 18. ábrán SEM felvételek láthatók reprezentatív tűről.



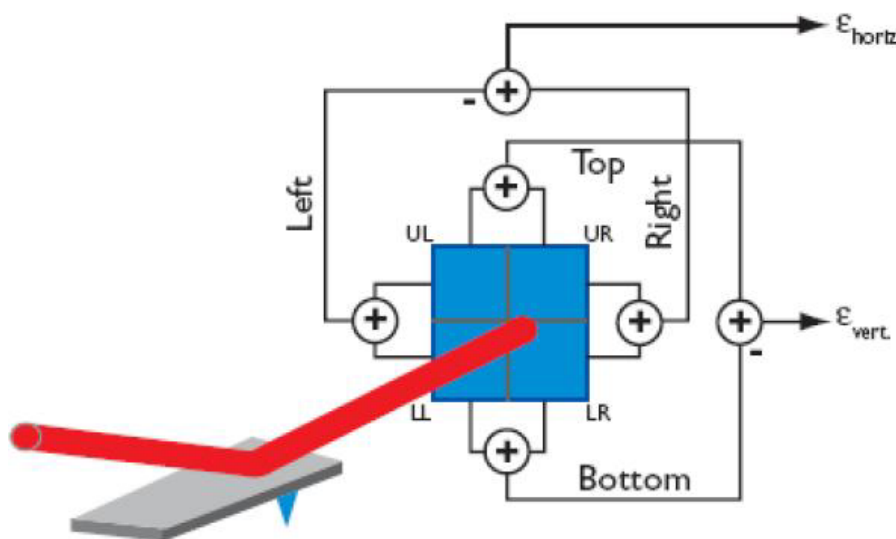
18. ábra: Reprezentatív tűről készült SEM felvételek

A tűk hegye nagyjából szférikus alakú és úgynevezett effektív sugárral rendelkeznek. Tipikusan 10 – 20 nm sugarú tűk használatosak, de vannak ultrahegyes tűk is, melyek effektív sugara 1 nm körüli. A tűtartó lemez felülete a nagyon jó fényvisszaverő tulajdonság elérése érdekében

alumínium bevonatot kaphat. A tűk is bevonatokat kapnak a kísérlet céljától függően (mágneses, elektromos tulajdonságok mérése).

Pozíció érzékeny detektor

Amint azt már korábban említettem a mostani AFM berendezésekben a rugólemez elhajlását és torzióját lézer – optikai rendszerrel mérik. Időnként a nagyon pontos méréseket igénylő kísérletekben (egyes gyártók esetében) az optikai interferometria tudományát is alkalmazzák, amely szub-Å érzékenységet tesz lehetővé. Alapesetben azonban egy 4 szegmenses (negyedes) pozícióérzékeny fotodetektort alkalmaznak, amely egyidejűleg alkalmas az elhajlás és torzió mérésére. Az érzékelő rendszer vázlatát mutatja a 19. ábra. Mivel a vízszintes és függőleges elhajlások lényegesen nem függenek egymástól, ezért lehetséges a topográfia és az oldalirányú súrlódási erő független mérése.



19. ábra: A pozíció érzékeny detektor (PSD) sematikus rajza

3. 2. Üzem módok

Az atomi erőmikroszkópnak több üzemmódja is van. Alap üzemmódokból igazán csak hármat említhetünk: kontaktmód, non – kontakt mód, kopogtató (tapping) mód.

A minta roncsolásának lehetősége és sok egyéb zavaró tényező miatt a kontaktus módot kerültük. A kontaktus nélküli módban, mivel a tű 50 – 150 Å magasságban mozog a minta felett nem áll fenn a roncsolás problémája, viszont a felületre rakódott szennyeződés nagymértékben befolyásolja a mérést és a felbontást. A dolgozatban felhasznált mérések kopogtató (tapping) módban készültek.

Kopogtató (tapping) mód

A kopogtató mód jelenti a legnagyobb fejlődést az atomi erőmikroszkópiában. Használható olyan esetben is, amikor sérülékeny a vizsgált minta felülete, mindamellett elkerülhetőek a súrlódás, megtapadás és elektrosztatikus erők által okozott problémák. Ezen mód lényege, hogy a tű periodikusan, adott frekvenciával rezegve a minta felületét kopogtatja. A kopogtatás frekvenciája a rugólemez sajátfrekvenciájához közeli, melyet egy piezo – elektromos kristály segítségével állítanak elő. A piezokristály viszonylag nagy amplitúdóval (~20nm) tudja rezgetni a tűt. Egy vizsgálat alatt a tű ~50 000 ÷ 500 000 koppantást tesz. A rugólemez frekvenciájának állandóságát egy visszacsatolás biztosítja. Az optimális frekvenciát különböző programokkal szabályozzák és az erőt mindig minimálisra állítják.

A dolgozatban felületi durvaság mérését végeztük el minden indokolt esetben. Az elkészített felvételekből (képekből) egy jól definiált metodika szerint megállapíthatóak a felületi durvaság paraméterei.

3. 3. Felületi durvasági paraméter

A felület durvaságát az AFM–el mért felületi vonalprofillal és a vonalprofilból meghatározott különböző paraméterekkel jellemezhetjük. A vonalprofil alakja sokféle függvényre hasonlíthat, ezért bonyolultabb függvények esetén egyre több paraméterrel kell jellemeznünk. A jellemző paramétereket általánosan két csoportra bonthatjuk: amplitúdó- és alak – térköz paraméterek. A paraméterek meghatározásának módját jelenleg ISO szabványok rögzítik, melyeket természetesen a forgalomban lévő kiértékelő programok figyelembe vesznek.

Az amplitúdó paraméterek közé tartoznak: az R_a aritmetikai átlagos magasság, az R_q négyzetes közép magasság (RMS), R_v és R_p a legnagyobb völgy mélysége és a legnagyobb domb magassága, stb. Ezek közül a dolgozatban a felületi durvaság jellemzésére kizárólag az R_q négyzetes közép magasságokat fogom megadni. Ez az értéket a következő egyszerű módon számíthatjuk. Feltételezve, hogy a felületet $z(x)$ függvénnyel jellemezzük L hosszúságon belül, az R_q értékét a következő képlet adja:

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{L} \int_0^L z^2(x) dx} , \quad (27)$$

Mivel a munkám során kísérletileg meghatározott R_q értékek nagyon kicsik (mindig <1 nm) voltak és a felvett AFM képeken (vonalprofilokon) nem volt tapasztalható különleges alakú felületi morfológia, ezért nem láttam értelmét felsorolni a fentebb említett összes jellemzőt.

1. Ionporlasztás. Porlasztási hozam

A céltárgy atomjai akkor porlódnak el, ha az ütközések közben kapott energiájuk (impulzusuk) a felületre merőleges komponense nagyobb, mint a felületi kötési energia. Ezt az energiát praktikus okokból gyakran azonosítják a szublimációs hővel. Ezt a folyamatot nevezzük tehát fizikai porlasztásnak. A különböző ütközési mechanizmusoktól függően, az elporlódott atomoknak jól definiált energia és szögbeli eloszlásuk van. Fizikai porlasztás közben nem alakul ki kémiai kapcsolat a bombázó ion és a céltárgy atomjai között, nem úgy, mint az úgynevezett kémiai porlasztás során [29].

Függően a bombázó ion energiájától és a kölcsönhatási hatáskeresztmetszettől többféle ütközési tartományt (regime) különböztetünk meg [30, 31]:

Egyszeres ütközési tartományról beszélhetünk könnyű ionok és kis energiájú nehezebb ionok esetében. Ebben az esetben a megütött atomok elegendően nagy energiát kapnak az elporlódásukhoz, de nem elegendőt egy kaszkád felépítéséhez.

Lineáris kaszkád tartományról van szó, amikor a megütött atomnak elegendő lesz az energiája egy kaszkád létrehozásához. Ugyanakkor a megütött atomok sűrűsége kicsi, vagyis az egyszeres elsődleges megütések száma dominál, de a mozgó atom ütközése ritka.

Spike képződési tartomány alakulhat ki nehéz ionokkal való bombázás esetén. Ilyenkor megnő a többszörösen megütött atomok sűrűsége egy adott térfogatban, melynek következtében nagyon sok rácshiba képződik. Ezután sok olyan megütött atom marad melyek energiája már nem elegendő maradandó rácsbéli elmozdulások előidézéséhez, de rácsrezgések keltéséhez igen. Így alakul ki az a magas hőmérsékletű tartomány is melyet termikus „spike”-nak neveznek. A ionok behatolásának végső szakaszában kialakuló termikus spike leírására Y-T. Cheng és W. Bolse alkotott egy diffúziós modellt, melynek alapján a termikus spike kialakulásához szükséges kritikus energia is kiszámolható [32, 33]. Az egyenletből láthatjuk, hogy a termikus spike kialakulását a lerakott (deposited) energia sűrűsége határozza meg, amely függ az ion – céltárgy atom párosítástól.

Ha egy porlasztási eseményt vizsgálunk, egy bombázó ion hatását, az atomi skálán mérhető. Ugyanakkor, nagyszámú ion bombázásának következménye már makroszkopikus változásokkal jár, olyanokkal, mint súlyváltozás és kráter kialakulása. Az előidézett makroszkopikus változások kvantitatív jellemzésére bevezethetünk két paramétert. Az egyik a

porlasztási (marási) sebesség, amely egységnyi anyagvastagság eltávolításának sebességét adja meg. A másik a porlasztási hozam, amely a porlasztás mikroszkopikus effektivitását jellemzi leginkább. Ezek közül a porlasztási sebesség egy olyan mennyiség mely általánosan jellemzi az adott céltárgy porlasztási folyamatát. Azaz, a porlasztási sebesség nem jellemzi közvetlenül a bombázott anyag és az alkalmazott ionsugár fizikai tulajdonságait. Így, tehát nem nevezhetjük anyagi paraméternek.

Porlasztási hozam

A teljes porlasztási hozam a porlasztás effektivitására jellemző fizikai mennyiség. Definíciója szerint a teljes porlasztási hozam Y_T egyenlő az egy ion becsapódásának hatására a szilárd test felületét elhagyó atomok átlagos számával. A porlasztási hozam kísérleti meghatározásához tehát ismernünk kell a céltárgy felületéről távozó atomok számát és ugyanerre a felületre eső iondózsát is. A porlasztási hozam, tehát a céltárgy fizikai paramétere, jól definiált felület és bombázási körülmények között. Ismerete fontos lehet különböző eszközök élettartamának vizsgálatánál [39, 46, 47] is.

A bombázó ion lehet egyatomos, molekuláris és nagyobb atomi klaszter is. Egyfajta atomokból álló molekuláris bombázás esetén minden becsapódó atom külön atomonkénti redukált energiával becsapódó részecskeként számolódik.

A porlasztás analitikus elméletéből [21, 28, 30] az integrális transzportegyenletek $V(r) \propto r^{-1/m}$ speciális kölcsönhatási potenciálra vonatkoztatott közelítő megoldásaiból láthatjuk, hogy a porlasztási hozam függ a bombázó ion energiájától és beesési szögétől. Az elsőrendű aszimptotikus megoldás egy paraméteres formájú képlettel rámutatott a porlasztási hozam és az elporlasztott atomok eloszlásának a bombázás körülményeitől való függésére. Ennek alapján a porlasztási hozam a következő alakban paraméterezhető:

$$Y(E_0, \Theta_0) = \Lambda F_D(E_0, \Theta_0, 0) , \quad (28)$$

ahol, E_0 az ion kinetikus energiája és Θ_0 a beesési szöge; $F_D(E_0, \Theta_0, x=0)$ pedig az úgynevezett nukleáris energia átadási függvény egy végtelen tér $x=0$ mélységében. Ez a függvény arányos a nukleáris fékeződési hatáskeresztmetszettel, azaz $S_n(E_0)$ értékével. Λ egy anyagi paraméter, amely közelítőleg a $\Lambda = 0.04/NU_s$ kifejezéssel adható meg [34]. U_s a felületi kötési energia. A (28) megoldásból tehát látható a porlasztási hozam ionbombázási paraméterektől való függése. Ahhoz, hogy bevezessék a porlasztási határ energiától való függést is, Bohdansky is levezetett egy képletet a porlasztási hozamra merőleges ionsugár beesés esetére, egykomponensű céltárgyakra [35]. Ez a képlet nagyon erős kölcsönhatási potenciált feltételezett (Thomas – Fermi), így túl nagy értékű porlasztási határ energiákat

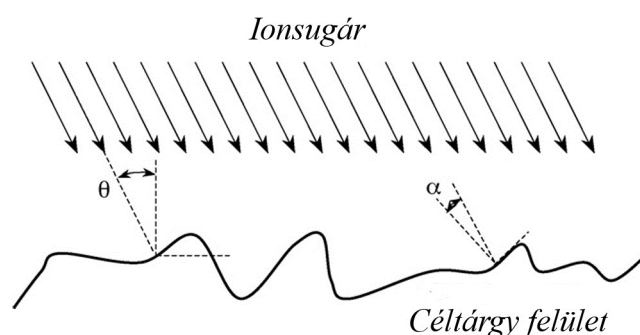
jelzett egy későbbi [36] számításhoz képest. A képlet alapján számolt értékek nem voltak jó összhangban a kísérletileg meghatározott értékekkel sem [37].

Több munka alapján kiderült, hogy az analitikus elmélet segítségével számolt ion – szilárd test kölcsönhatást jellemző mennyiségek (porlasztási hozam, porlasztási határ energia) jól követik a viselkedési trendeket, de az általuk adott számbeli eredmények nagymértékű eltéréseket mutatnak a kísérletekkel szemben. Ráadásul a transzport egyenletek numerikus megoldása korunk fejlett számítógépeit alkalmazva is nagy számítási erőforrásokat igényel, így hosszadalmas folyamat. Időközben kialakult egy másik irány az ion – szilárd test kölcsönhatás modellezésében és így a fizikai mennyiségek kvantitatív számításában is. Ez nem más, mint a Monte Carlo szimuláció, mely alkalmazza az analitikus elméletből már jól ismert páros ütközés közelítést. A dolgozatban kizárólag a Monte Carlo szimulációs célprogramokat alkalmaztam, ezért külön fejezetben (3. fejezet) foglaltam össze leírásukat.

2. A porlasztási hozam kísérleti meghatározása

Ebben a fejezetben röviden bemutatok néhány kísérleti módszert az porlasztási hozam meghatározására. Mivel a kísérleti körülmények nagymértékben befolyásolhatják a porlasztási hozam meghatározásának helyességét, ezért először előre kell bocsátanunk néhány alapvető kritériumot. Ezek a kritériumok a porlasztási hozam meghatározásához nyújtanak segítséget, mely adott ionbeesési szögre vonatkozik:

- a) Ionsugár forrást alkalmazunk, hogy a bombázó ionok beesési szöge meghatározható legyen. A sugár legyen jól meghatározott monoenergetikus és kis divergenciájú (ez fontos a sűrűlódó beesésű kísérletekben). A beeső dózis legyen meghatározva a lehető legpontosabban.
- b) Mivel a porlasztási hozam függ az ionok beesési szögétől ezért a bombázott felület legyen a lehető legsimább. Nem atomosan sima felület esetében az ionok tényleges beesési szöge lokálisan változik a 21. ábrán látható módon. Így durva felület esetén a sima felület normálisához képest beállított ionbeesési szög mellett, a valódi (lokális) beesési szögeknek valamilyen a felület morfológiája által befolyásolt eloszlása lesz [38, 39]. A kezdeti lokális szögeloszlást ugyan AFM segítségével meg tudjuk határozni, de ezzel visszakorrigálni kvantitatív módon igen nehéz és általában nem szokták ezért megtenni. Ilyenkor egy az adott felületre, nem pedig az anyagra jellemző porlasztási hozamot fogunk mérni.



20. ábra: Ionbeesési szög θ és lokális ionbeesési szögek α [39].

Tudjuk azt is, hogy az ionbombázás folyamatos felületi morfológiafejlődést idézhet elő [12, 13, 40, 41], ezért a kezdeti felületen mért lokális szögeloszlás változhat is a mérések során, nem elegendő tehát csak a kezdeti felület simasága. A kísérlet alatt végig meg kell őriznünk a felület simaságát [42]. Előfordulhatnak nem amorf vagy textúrált polikristályos

szerkezetű céltárgyak is. Ilyenkor ellenőrizni kell a céltárgy szerkezetét, mert lehetnek kitüntetett irányok melyekben eltérő porlasztási hozamot mérhetünk.

- c) Az ionbombázás közbeni ionimplantáció elhanyagolható legyen, hogy elkerüljük az ion önmaga porlasztását. Ez hamis, csökkent porlasztási hozam méréséhez vezet.
- d) A kísérlet teljes időtartama alatt jó vákuum körülmények legyenek. Ez az adszorpció elkerülése (felületi szennyezés) és néhány aktív anyag vegyületformáló képessége miatt fontos. Alapvető feltétel, hogy egy időegység alatt a felületen megtapadó maradékgáz atomok száma elhanyagolhatóan kicsi legyen, az elporlódó atomok számához képest.

Ha a fentebb felsorolt követelmények teljesíthetők, akkor meghatározható a porlasztási hozam. Ehhez, a definíciót követve, meg kell mérnünk az elporlasztott anyag mennyiségét és a bombázó ionok dózisértékét.

Az eltávolított anyag mérése

Az ionporlasztással eltávolított anyagmennyiség meghatározása is több módszerrel történhet, melyeknek egymással szemben több előnyük és hátrányuk van. Röviden ezek a következők módszerek lehetnek:

- a) *A tömegvesztés mérése* [39, 46-49]. Talán a legegyszerűbb, nagy és bonyolult berendezéseket nem igénylő, a leggyakrabban alkalmazott módszer. A vizsgálandó anyagot vékony réteg ($\sim \mu\text{m}$) formájában felviszik egy meghatározott f_0 rezonanciafrekvenciájú kvarc rezonátorra, vagy más néven egy kvarc kristály mikrobalszra (QCM). A lényege, hogy a QCM f_0 frekvenciája megváltozik a kvarc kristály tömegének megváltozásakor. A következő egyszerű összefüggést írhatjuk fel a frekvenciaváltozás és a tömeg változás kapcsolatára ideális esetben [50]:

$$\Delta f = -\frac{2 f_0^2 \Delta m}{A \sqrt{\rho_q \tau_q}}, \quad (29)$$

ahol, Δf – a rezonancia frekvencia eltolódása (Hz), Δm – a rezonátor tömegváltozása (g), ρ_q – a kvarc kristály tömbsűrűsége (g/cm^3), τ_q – a kvarc kristály nyírési modulusa és A – az aktív felület területe (cm^2). Így meghatározva a tömegvesztést, amely $\sim \mu\text{m}$ vastagságú réteg elporlasztásakor $\sim 10^{-9} \text{ g/mm}^2$ nagyságrendű [39], következő összefüggésből kiszámíthatjuk a porlasztási hozamot [1]:

$$Y = \frac{\Delta m}{M I t} N_A, \quad (30)$$

ahol, M – az elporlasztandó atomok atomtömege, I – ionáram, t – porlasztási idő, N_A – az Avogadro szám.

A módszernek két fő hátránya is van. Az egyik, hogy nem kontrolálható az ionbombázás indukált felületi durvaság ami még szembetűnőbb, ha figyelembe vesszük,

hogy nagy Δm -hez sok anyagot kell eltávolítani viszont az ionbombázás indukált felületi durvaság kialakulásának valószínűsége növekszik az eltávolított anyagmennyiség növelésével [51]. A másik hátránya a porlasztás közbeni felületi összetétel és kötésállapotok mérésének hiánya.

- b) *Az elporlasztott anyag összegyűjtése* is egy lehetséges módszer a porlasztási hozam meghatározására. A módszer nem túl elterjedt [9, 52]. Ennél a módszernél a legfontosabb nehézséget a letapadási együttható változása okozza. M. A. Mantenieks és munkatársai [52] egy NASA projekt keretén belül R sugarú félgömb Al fóliára gyűjtöttek elporlasztott Ta atomokat. Az Al fólián kialakult Ta réteg $d(\theta)$ vastagságát és ρ atomi sűrűségét Rutherford visszaszórási spektrométerrel (RBS) mérték meg. A differenciális porlasztási hozamot $Y(\theta)$ a következő képlettel számolták:

$$Y(\theta) = \frac{R^2 \rho d(\theta) e}{I t} \quad (31)$$

ahol, e – elektrontöltés, I és t ugyanaz, mint (30). A teljes porlasztási hozamot a differenciális porlasztási hozamok szögbeli integrálásával számították ki.

- c) *Kráter analízissel kombinált mélységi profilírozás* [45] esetében vékonyréteg szerkezetű céltárgyon mélységbeli atomi koncentráció eloszlást mérnek valamilyen felület érzékeny spektroszkópai módszerrel, például Röntgen foto – elektron spektroszkópiával (XPS). A mért mélységi koncentráció eloszlás profilból, feltételezve az atomrétegenkénti anyageltávolítást és hagyományos hibafüggvény szerű rétegátmenet esetében meghatározható a réteg eltávolításához szükséges (t) porlasztási idő. A réteg végét ebben az esetben megegyezés szerint 50 % koncentrációjú pontban határozzák meg.

A porlasztási hozam meghatározásához ebben az esetben is szükség van az adott területegységre egységnyi idő alatt jutó ionok számára, azaz az ionáram sűrűsége. Ebben az esetben M. P. Seah és T. S. Nunnely kráteralak analízist alkalmaztak [45]. Az ionáramot Faraday hengeres módszerrel mérték meg. A besugárzás területét (A) a keletkezett kráter optikai vizsgálatának segítségével jellemezték a réteg fél vastagságánál megállítva a porlasztást. A kráter szélességét és mélységét egy kalibrált optikai mikroszkóppal fényvisszaverődésből alkotott képből határozták meg.

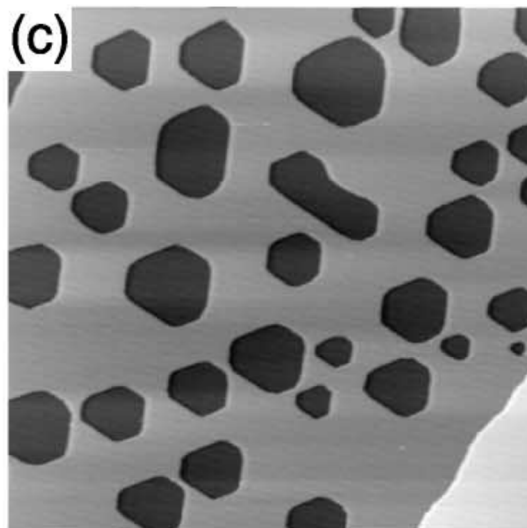
A porlasztási hozam Y így a következő egyszerű összefüggésből számolható:

$$Y = \frac{e \cdot d \cdot A}{I \cdot t} * \frac{\rho \cdot N_A}{M}, \quad (32)$$

A réteg vastagságát ebben az esetben ellipszométeres méréssel vagy transzmissziós elektronmikroszkópiával határozhatjuk meg. Fontos a bombázott réteg mélységbeli homogenitása is.

A leírt módszert előnye, hogy in-situ analizálható a céltárgy mélységbeli minősége. Ugyanakkor nem alkalmazhatjuk nem szokványos (nem hibafüggvény szerű) rétegátmenetek esetén, ilyenkor pontatlanná válik a porlasztási idő meghatározása. A rétegvastagsághoz képest széles réteghatár átmenet esetén sem alkalmazható jól az 50% koncentráció szintnél való porlasztási idő meghatározás, mivel itt már nem elhanyagolható a koncentrációval változó porlasztási hozam. A kráter analízis érzékeny a kráteralakra. Munkájukban, Seah és Nunney SiO₂ porlasztási hozamát határozták meg. Felhívták a figyelmet, hogy szigetelők esetén a lehetséges töltődés torzíthatja a kráter alakját. Nagy ion beesési szögek esetén (súrló ionbeesésnél) azaz lapos, nagy kiterjedésű krátereknél szintén pontatlanná válik a kráter mélységének meghatározása a fényreflexióban elmosódó határok miatt.

- d) *Pásztázó Alagút Mikroszkópos módszer [38]*. A pásztázó alagút mikroszkóp (STM) felületi atomi felbontást tesz lehetővé ultra nagy vákuum körülmények között. Így jól definiált ion besugárzások esetén egyatomos rétegenként meghatározható az elporlasztott anyagmennyiség adott területről. Mivel az ionbombázás indukált felület alatti hibák adott hőmérsékleten a felületre diffundálnak, így a bombázott felületen szigetek jelennek meg ahol egy monorétegnyi anyag hiányzik. Ez jól megfigyelhető a 21. ábrán.



21. ábra: Pt (111) felületén ionbombázás hatására kialakult monoréteg hiányos szigetek [38]

Ezen szigetek területét megmérhetjük az STM –el és így egy atomréteget (monoréteget) 1.504×10^{19} atom/m² sűrűségűnek véve megkapjuk az adott területről hiányzó atomok számát. Ezt a módszert 2004 – ben Thomas Michely és munkatársai [38] alkalmazták Pt (111) felület porlasztási hozamának meghatározására. Ebben a munkában meg tudták vizsgálni a kialakult felületi morfológia (lépcsők és teraszok) szerepét is.

A fentebb felsorolt módszereket két virtuális csoportba osztanám. Az a) és b) pontokban felsorolt mérések mindegyike egy adott körülmények között ionporlasztott anyag átlagos „makroszkopikus” porlasztási hozamát határozza meg. Ezek élettartam becslések szempontjából jól alkalmazható értékek (ionhajtóművek, reaktorok). Ugyanakkor ezekkel a módszerekkel meghatározott porlasztási hozamok olykor kísérlettől függően ugyanazon anyagra nagyságrendbeli különbségeket eredményeznek az ionporlasztási hozam értékében (lásd [9]).

A c) pontban leírt módszerben a felületi atomi koncentráció érzékeny spektroszkópia alkalmazása már lehetővé teszi az adott időegység (rétegvastagság) alatt elporlasztott atomennyiség kvantitatív meghatározását és porlasztott anyag in-situ jellemzését. Ugyanakkor itt sem kapunk direkt visszajelzést az ionbombázás által esetlegesen kialakult felületi morfológiáról. Megvan azonban a lehetősége olyan technikák alkalmazására melyek csökkentik az ionindukált felületi durvulás kialakulásának valószínűségét [42]. A módszer nem alkalmazható sűrűlódó beesésű ionbombázáskor. A dolgozatban hasonló, de több mindenben továbbfejlesztett, módszert alkalmaztam az elporlasztott anyag mennyiségi vizsgálatára sűrűlódó ionbeesés esetére.

A d) pontban bemutatott módszer egy egyedi módszer, amely atomi szinten vizsgálja az ionbombázás indukált felületi folyamatokat. Gyakorlatilag atomi rétegenként megszámlálható az elporlasztott anyag mennyisége és egyben kvantitatív nyomon követhetők a felületi morfológiafejlődés által okozott hatások (lépcsőhatások). Így ebben az esetben egyértelműen a meghatározott ionporlasztási hozam az elporlasztott anyag atomi, fizikai tulajdonságait jellemzi, vagyis valóban atom/ion mennyiséget.

Az ionáram mérése

A legegyszerűbb esetben a bemenő dózist a bemenő töltés mennyiségével azonosíthatjuk. Azonban ezt csak akkor tehetnénk meg, ha az alkalmazott ionágyúból kizárólag töltött részecskék érik el a céltárgyat. Ebben az esetben egy Faraday henger segítségével mérhetjük meg az ionáramot. Ezenkívül nagy problémát okoz az indukált szekunder elektron emisszió mértékének pontatlan ismerete és az ionok egy részének visszaszóródása is.

Az irodalomban több megoldást bemutató, tárgyaló munkával is találkozhatunk. Ilyen A.D. Gaus és társai munkája 5 különböző konstrukciójú ionforrás kijövő áramát vizsgálták [43]. Ebben a munkában nem foglalkoztak a forrásokból kijövő részecskék töltésállapot

szerinti szelektálásával és a becsapódó ionok által indukált szekunder elektron emisszió változásával. A bombázott anyag szekunder elektron emissziója függ a bombázás paramétereitől (beesési szög, töltésállapot, stb.). Léteznek speciális kialakítású Faraday hengerek, melyek lehetővé teszik a részecskesugárban jelenlévő több féle töltésállapotú összetevők elektrosztatikus szétválasztását [44]. Ezek anyaga (grafit) jól ismert szekunder emissziós tényezőjű, így elég jó korrekciókat hajthatunk végre a különböző töltésállapotú részecskék áramának mérésénél. Porlasztásnál tulajdonképpen ezt a féle szétválasztást úgy is felhasználhatjuk, hogy leválasztjuk a töltött összetevőt és csak a neutrálissal porlasztunk (vagy fordítva). Ezt intézetünkben Barna Árpád is alkalmazta ionágyúk fejlesztése tesztelése közben. A legtöbb kísérleti munkában [39, 45, 46] azonban egyszerűsége miatt a Faraday hengeres ionáram mérést alkalmazták.

A mi esetünkben porlasztási hozam meghatározásához azonban nem pusztán az ionáram értékére van szükségünk, hanem a vizsgált területegységre és a vizsgálati időre vonatkoztatott értékre, azaz az ionáram sűrűsége. A kölcsönhatási terület meghatározása merőleges ionsugár beesésnél egyszerűbb. Ilyenkor lehetséges módszer, ha egyszerűen a Gauss szerű eloszlást követő sugáralak félértékszélességének méretét vesszük alapul. Merőleges ionsugár beeséstől eltérő konstrukciónál az említett megoldás értelemszerűen nem működik. Ilyenkor lehetséges módszer az ionsugárzás által okozott kráter méreteinek meghatározása optikai módszerekkel [45]. Nehezedik a helyzet relatíve nagy ($70^\circ - 86^\circ$) ionsugár beesési szögek esetében, amikor egyre fontosabbá válik a bombázott felület ionsugárhoz és az analizált területhez (ahonnan az eltávolított atomok száma mérődik) képesti relatív pozíciója. Talán ez az egyetlen kísérleti helyzet az, amikor az elporlasztott anyagmennyiség mérésére alkalmazott kísérleti technikák között előnybe kerülnek a laterálisan kevésbé lokális módszerek. A dolgozatban alkalmazott módszer és kísérleti körülmények együttese miatt tehát az abszolút ionáram sűrűségének mérése nagy hibákat vinne be az abszolút porlasztási hozam meghatározásába. Ugyanakkor a kísérletek ideje alatt az ionáram és a relatív pozíció állandó szinten tartása minden nehézség nélkül megvalósítható. Így kísérleteimben csak a vizsgált anyagok egymáshoz viszonyított, ugyanazon kísérleti körülmények között, meghatározott porlasztási hozamokat határoztam meg. Később láthatjuk, hogy ez a nehézség sok szempontból nem rontja az általam alkalmazott kombinált módszer értékét.

Az irodalomban nagymértékű szórás figyelhető meg a kísérletileg meghatározott porlasztási hozam adatok között. Ennek okát magyarázhatjuk akár az ebben a fejezetben tárgyalt különböző kísérleti problémákkal.

Mivel az AES mélységi feltérképezés alkalmas közvetlenül megvizsgálni a porlasztott anyag minőségét és mennyiségi összetételét, akár az előzőekben említett porlasztási mellékhatások visszaszorítása mellett is, ezért érdemesnek tartottam alkalmazni a kiválasztott rétegrendszernek ilyen irányú vizsgálatához.

3. Eredményeim: Relatív porlasztási hozam

3. 1. A kísérletek előkészítése

Az AES mélységi feltérképezés vizsgálatokat C/Ni, Si/Cr, Au/Si/Cr, Ta(-C)/C (karbiddal szennyezett) és C/Ta/C szerkezetű vékonyrétegeken hajtottam végre. Korábbi vizsgálataink kiderítették, hogy az ionbombázás indukált atomi keveredés szempontjából a rétegek sorrendje fontos lehet [53], ezért Ta(-C)/C és a Ta/C struktúra esetében ezek fordítottját, azaz C/Ta(-C) és C/Ta mintákat is megvizsgáltam. A vékonyréteg minták mindegyike nagy tisztaságú (UHV) porlasztásos módszerrel készült.

A vizsgálatok különböző célja miatt az ionsugár beesési szögtartományok változtak a különböző mintatípusok esetében. A meredekebb ionbeesési szögtartományt, általában 22° – 70° (mindig a felületi normálistól számítva), nemzetközi együttműködésben, Ljubljanában a Jozef Stefan kutatóintézetben mérték. A megkapott nyers méréseket viszont, mi értelmeztük. Így C/Ni anyagpárnál 49° – 88° ionbeesési szög tartományban, míg Si/Cr rétegpár esetében 22° – 87° ionsugár beesési szögtartományban sikerült a kísérleti eredményeket összefoglalnom. Az Au/Si/Cr típusú mintán csak 80° beesési szögű mérés készült, mivel e mérés elengedhetetlen, de nem fő célja volt a porlasztási hozam meghatározása.

A dolgozat minden esetben csak az 1 keV energiájú Ar^+ ionok alkalmazásával végrehajtott AES mélységi profilírozás mérésekkel foglalkozik. A Budapesten végzett mérések egy, Barna Árpád által kifejlesztett kisenergiás ionágyú segítségével [54] készültek. Saját kísérleteimben ionbombázás alatt a minták minden esetben forgatva voltak (6 fordulat/perc sebességgel) a lehetséges ionsugárzás indukált felületi durvulás visszaszorítása érdekében [42]. A Ljubljanában elkészített mérések nem forgatott, ugyanakkor két szembenálló kisenergiás ionágyúval bombázott mintákon készültek (ez a konfiguráció is nagymértékben visszaszorítja az ionindukált felületi morfológiafejlődést).

A mért Auger elektron csúcsok intenzitásait a III. 1. fejezetben tárgyalt relatív érzékenységi tényezők módszerével alakítottam át atomi koncentrációvá. Mivel csak C/Ta átmenetek esetében volt nagyon éles réteghatár átmenet, ezért ott ellenőriztem az Auger elektronok véges szabad úthossza miatt létrejövő látszólagos réteghatár kiszélesedést is. Végeredményként megkaptam a vizsgált réteg párok mért atomi koncentráció eloszlásának porlasztási idő függését. Ezek további kiértékelését az általam erre a célra kifejlesztett feltételezéseken alapuló algoritmussal végeztem, melyet az alább következő rész ismertet.

A rétegszerkezetet és a valós rétegvastagságokat a transzmissziós elektronmikroszkópia (TEM) vizsgálatok adták. Mivel mind a jó mélységi felbontáshoz mind

pedig a porlasztási hozam helyes meghatározásához elengedhetetlen a minél simább felület, ezért indokolt esetben a minták felületi durvaságát megmérettük atomi erőmikroszkóppal (AFM).

3. 2. A porlasztási hozam meghatározására kidolgozott algoritmus (s5)

A mélységi feltérképezés során a bombázási idő függvényében mérjük a koncentráció változást. A módszer legkényesebb lépése az, amikor a bombázási időt eltávolított anyagmennyiséggé, vagy röviden mélységgé konvertáljuk. Erre dolgoztam ki egyszerű algoritmust.

A vizsgált vékony rétegek vastagsága a TEM felvételekből ismert. Ugyanazt a teljes rétegvastagságot (atomszámot) kell eltávolítani az Auger elektron spektroszkópiai mélységi profilírozás alatt is. Ha az eltávolítás diszkrét lépésekben történik (atomi rétegenként), ezt a teljes rétegvastagságot (d_i) kiszámíthatjuk, az egyes Δt lépések alatt eltávolított Δd_i vastagságok összegzésével. A Δd_i vastagságokat a $\Delta d_i = N_{\Delta t}^i / \bar{\rho}$ képlet alapján számíthatjuk ki, ahol $N_{\Delta t}^i$ a Δt porlasztási idő alatt eltávolított i típusú atomok száma, $\bar{\rho}$ az eltávolított réteg átlagos tömbi atomi sűrűsége. Az átlagos atomi sűrűség meghatározását csak durva közelítéssel tudtam megoldani. Azt tételeztem fel, hogy az ionkeverés során ideális oldat alakul ki. Ennek használatát némileg azzal lehet megindokolni, hogy a keveredés során igen gyorsan „lehül” az anyag és nem egyensúlyi állapotban marad. Tudjuk, hogy ez sok esetben nem igaz. Ugyanakkor a tényleges sűrűségeket sajnos nem tudjuk konzekvensen beépíteni a kiértékelésbe. Meg kell azonban azt is említenem, hogy ugyanezt a közelítést alkalmazzák az ismert ionbombázást modellező szimulációk (pl. TRIM, TRYDIN) is ugyanilyen okok miatt. Persze azok is figyelmeztetnek a közelítés tökéletlenségére.

Az ideális oldat tulajdonságait az összetevők lineáris kombinációjából számíthatjuk. Tehát a keverék átlag atomi sűrűségét a $1/\bar{\rho} = \sum_i (X_i / \rho_i)$ képlet alapján fogjuk számolni, ahol ρ_i - és X_i az i típusú elem tömbi atomi sűrűsége illetve koncentrációja. Egyes esetekben az ideális oldat közelítés jól megadja vegyületek sűrűségét is (pl. hexagonális Ta₂C esetében), de sok esetben nem.

A sűrűség mellett kell ismernünk az egy lépésben eltávolított atomok számát, amihez a keverék porlasztási hozamát is kell ismerni. A Δt időegység alatt A területről eltávolított

i típusú atomok számát a következő egyenletből számíthatjuk: $N_{\Delta t}^i = A * X_i * Y_T * \Delta t * J$, ahol Y_T - az eltávolítandó anyag teljes porlasztási hozama, J - az ionáram sűrűsége.

Ionbombázás indukált atomi keveredés (rétegátmenet) esetén a teljes porlasztási hozam koncentrációval változó paraméter. A teljes porlasztási hozam számítása rendkívül bonyolult, hiszen egy keverék vagy ötvözet porlasztása során bonyolult szimultán atomi transzport folyamatok (atomi keveredés, diffúzió, fázisok kialakulása, porlasztás) eredménye a kialakuló szerkezet [66]. Olyan kísérleti alkalmazásnál ahol a porlasztás során nem áll be egyensúlyi állapot gyakran használnak egyszerűsített számításokat. Egy ilyen egyszerűsítés, ha teljes (T – total) porlasztási hozamot lineáris közelítéssel határozzuk meg azaz: $Y_T = \sum_i (X_i Y_i)$, ahol Y_i – az i típusú elem porlasztási hozama tiszta anyagra. Ennek a feltételezésnek a jogosságát enyhén alátámasztják az elvégzett SRIM szimulációk. A szimulációval és a fenti feltételezés alapján számolt Y_T értékek közötti különbség az általunk vizsgált anyagok esetére nem volt több mint 20%.

Behelyettesítve tehát a fentiekben tárgyalt paramétereket az egy lépésben eltávolított Δd_i vastagság számításába megjelennek, mint ismeretlen paraméterek az elporlasztott anyagok Y_i parciális porlasztási hozamai. Ha az ionáram sűrűsége ismert, akkor a helyesen megválasztott parciális hozamokkal számolt teljes rétegvastagságnak, d_i , egyeznie kell a TEM által mért valódi rétegvastagságokkal. Így a tiszta anyagok porlasztási hozamai automatikusan adódnak a két vastagság összehangolásakor.

Mint már említettük sajnos a mi kísérleti elrendezésünkben az ionáram sűrűségének pontos meghatározása nem volt lehetséges. Nagyszögű súrlódó ionsugár beesést alkalmazva az aktuális ionáram sűrűség nagyon erősen függ a minta és az ionsugár relatív pozíciójától. Azt is jól tudjuk, hogy az ionágyúból kilépő Ar^+ ionok valamilyen hányada (beállítástól függően 10 – 20%) semleges, melyek ugyanúgy részt vesznek a porlasztásban [58, 59, 60], tehát számuk nem meghatározható egyszerű Faraday – kollektoros mérési módszerrel. Ugyanakkor, az ionáram és a pozíció állandó szinten való tartása mellett a számolt rétegvastagságok hányadosából meghatározható az anyagok relatív porlasztási hozama Y_i / Y_j . Ilyenkor az Y_j –t egynek választva a J ionáram sűrűséggel a j típusú réteg számított vastagsága ráhangolható a TEM által mért vastagságra. Ez után már csak az Y_i hangolását végezzük úgy, hogy az i típusú réteg számolt vastagsága is megegyezzen a TEM vizsgálatból meghatározott valódi vastagsággal.

3. 3. A minták kezdeti szerkezete. XTEM vizsgálatok eredményei

A keresztmetszeti transzmissziós elektronmikroszkópia (XTEM) vizsgálatok pontos információt adnak a vékonyrétegek lokális szerkezetéről. A pontos vastagságmérés és a belső határfelületek (rétegátmenetek) minőségének ismerete alapvető paraméterek vékonyréteg vizsgálatoknál. Ha visszatekintünk a 3. 2. pontban ismertetett algoritmushoz, láthatjuk, hogy helyes használatához a pontos rétegvastagságokat és a rétegátmenet kiszélesedésének okát ismernünk kell. Ezért a dolgozat keretén belül vizsgált vékonyrétegeket XTEM vizsgálatokkal is minősítettük. A mintapreparálásnál minden esetben ionsugaras keresztvékonyítást alkalmaztak [61], melyhez a berendezéseket a Technoorg Linda Kft gyártja. A vizsgálatok az osztályunkon lévő Philips CM20 (200keV) és Jeol 3010 gyártmányú elektronmikroszkópokkal készültek. Az alábbiakban bemutatott eredményeket a vizsgálatok célja szerint rendeztem sorba.

C/Ni, Si/Cr, Au/Si rétegpárokon kapott eredmények

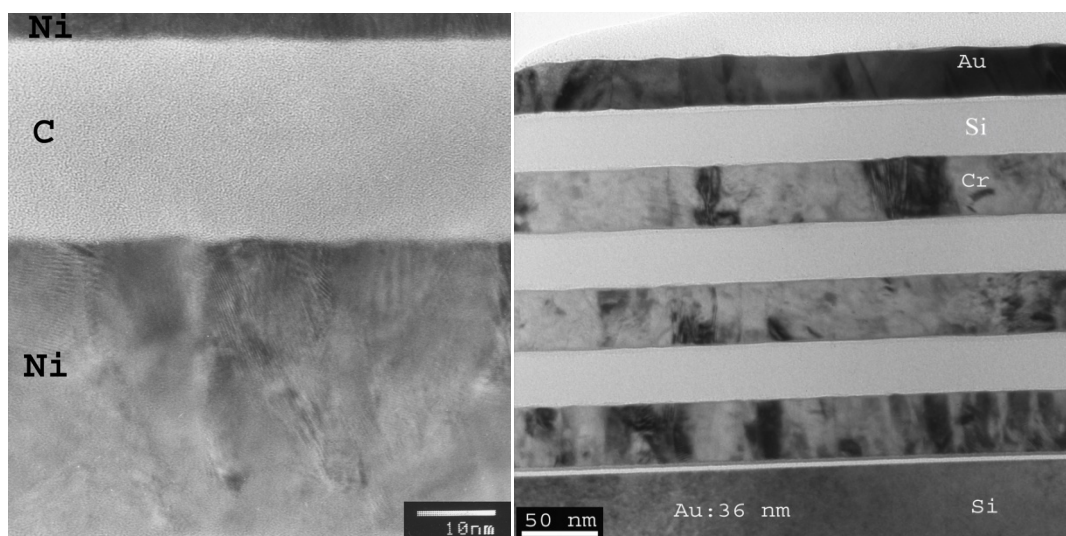
A C/Ni és Au/Si/Cr rendszer XTEM képét 22. (a, b) ábra mutatja. Látható, hogy polikristályos és amorf rétegek váltják egymást, amelyek jól elkülönülnek. A felvételek alapján meghatározott valódi vastagságok a következők voltak:

C/Ni – C1(20.6 nm)/Ni1(37.6 nm)/ C2(21.0 nm)/Ni2(37.8 nm)/C3(21.7 nm)/Ni3(38.6 nm)/[Si hordozó];

Au/Si/Cr – Au(34.6 nm)/Si1(42.3 nm)/Cr1(44.2 nm)/Si2(40.4 nm)/Cr2(44.2 nm)/Si3(40.4 nm)/Cr3(46.1 nm)/[Si hordozó]

A Ni szemcsék átmérője 10 – 20 nm között van. Ez a szemcseméret a rétegvastagsághoz képest elég nagy, 1 – 2 szemcse fér el a vastagság mentén. Ezért a 42. oldalon a b) pontban leírt kritérium szerint gondot okozhatott volna, ha esetleg valamilyen jól elkülönülő texturált szerkezet alakul ki emiatt. Ennek alapján felületi durvaság növekedés lett volna várható. Ellenőrizve viszont több ízben is a felületi durvaságot nem találtam ilyen jellegű hibát. Ez valószínűleg nagymértékben köszönhető az ionbombázás közbeni mintaforgatásnak. Azonban megfigyelhető az is, hogy a réteg átmenetek enyhén különböző durvasággal rendelkeznek. Ez valószínűleg magyarázható a rétegnövesztésnél amorf és polikristályos rétegek váltakozásával. Ezzel különösképpen nem foglalkoztam, mert a rétegátmenetek kiinduló szélessége minden esetben elhanyagolható volt a rétegvastagságokhoz képest. Az elhanyagolhatóságot erősíti az a tény is, hogy az Auger elektron spektroszkópiai méréseknél a ~1nm mélység felbontása nehéz és általában nem

indokolt, valamint csak az elektron transzportfolyamatok pontosabb figyelembevételével valósítható meg.

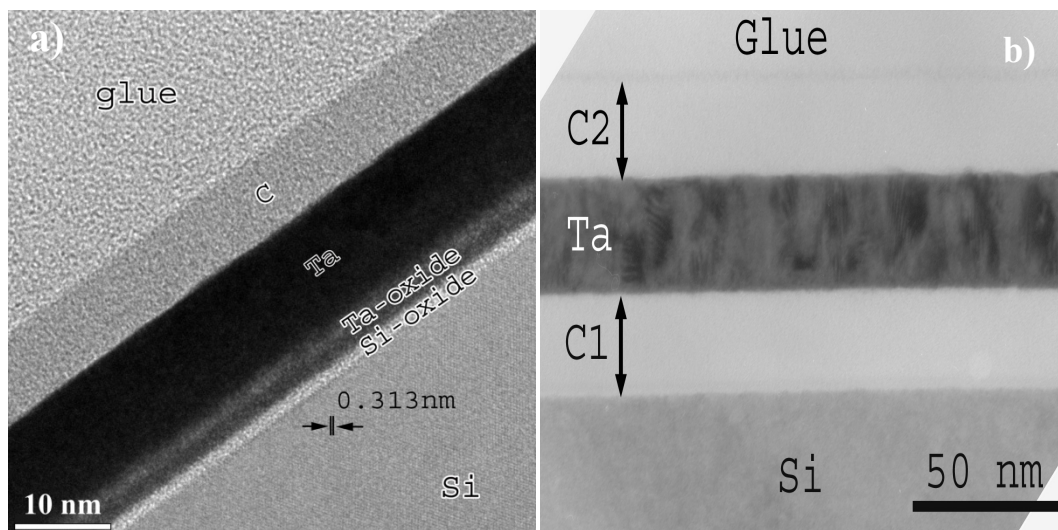


22. ábra: A C/Ni (a) és az $Au/3x(Si/Cr)$ (b) vékonyréteg rendszer keresztmetszeti képe

Ta(-C)/C, C/Ta(-C) és C/Ta/C réteg párok [5]

A $C/Ta(-C)$ a $C/Ta/C$ minták tipikus rétegszerkezetét mutatja a 23. ábra, a sorrendnek megfelelően. Az ellenkező sorrendű mintatípusok XTEM felvételét az egyszerűség kedvéért nem ábrázoltam. A felvételek alapján megállapított valódi rétegvastagságok a következők voltak: $C/Ta(-C)/.../[Si \text{ hordozó}] - C(8.5 \text{ nm})/Ta(11 \text{ nm})$ és $.../Ta(-C)/C/[Si \text{ hordozó}] - Ta(11.5 \text{ nm})/C(7.5 \text{ nm})$, illetve $C2/Ta/C1/[Si \text{ hordozó}] - C2(20 \text{ nm})/Ta(26 \text{ nm})/C1(20 \text{ nm})$.

A Ta réteg polikristályos jellege nem jól látszik, mert a vékonyítás nem teljesen jól sikerült és a minta nem volt elég vékony. Az XTEM vizsgálat külön problémája, hogy a ragasztó szén és minta szén közötti határt mutassa. Ez úgy tehető meg, hogy energia szűrt (EFTEM) elektronmikroszkópiát alkalmaztunk.



23. ábra: A C/Ta(-C)/.../[hordozó] (a) és a C/Ta/C/[hordozó] (b) típusú szennyeződésektől mentes minta keresztmetszeti képe

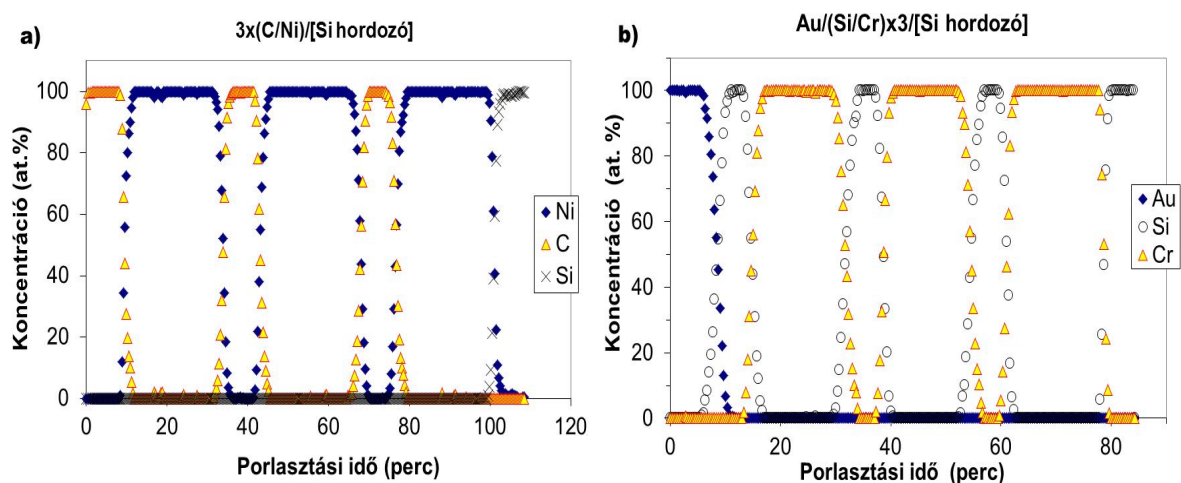
A 23. ábrán látható felvételek alapján a réteghatárok élesnek (<1 nm) mondhatóak, kezdeti réteghatár átmenet durvaságunk így elhanyagolható. Látható, hogy a 23. (b) ábrán bemutatott minta szerkezete kellően homogén. A 23. (a) ábrán bemutatott felvételen viszont a hordozó felőli oldalon láthatunk egy – egy enyhén változó vastagságú feltételezhetően oxid réteget. Később az Auger elektron spektrumok alapján egyértelműen azonosítottam őket, mint tantál – oxid és szilícium – oxid. A Ta – oxid és a Si – oxid együttes vastagsága 7 nm volt. A Ta réteg utáni számításokban Ta_2O_5 és SiO_2 összetételt feltételezve számoltam mélységskálát algoritmusom segítségével.

3. 4. A meghatározott relatív porlasztási hozamok és szögfüggő viselkedésük

C/Ni [s1, s4], Si/Cr [s2, s3, s4], Au/Si/Cr [s4] rétegpárok kapott eredmények

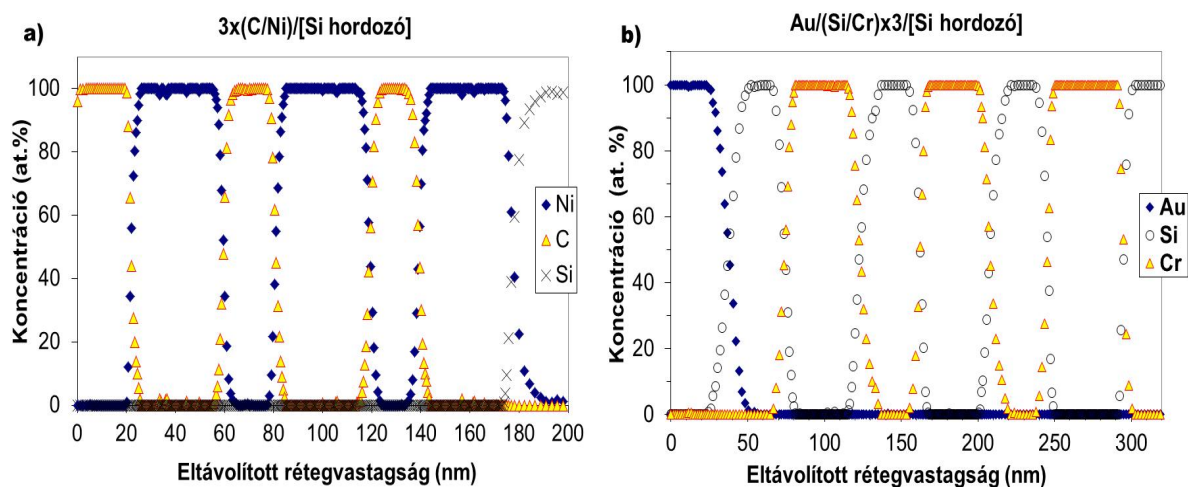
Kísérletsorozatunkat egy Si hordozóra porlasztással növesztett 3x (C/Ni) vékonyréteg rendszerű minta vizsgálatával kezdtük. A kísérletek célja a szén (amorf) porlasztásának részletes megismerése volt. A TEM ionporlasztásos mintakészítés általában kisenergiás ionporlasztással fejeződik be a kialakult nagyobb mértékben roncsolódott felesleges anyag és a szennyeződések eltávolítása érdekében. Az egyik ilyen tipikus szennyező anyag a szén. A szén porlasztásáról ismert, hogy meredekebb beesési szögnél nagyon rosszul porló anyag és eltávolítása körülményes. Ezért érdemes volt megvizsgálni porlasztásának természetét.

Ezeknél, a mintáknál nagyban megkönnyítette dolgomat, hogy a rétegrendszerben tiszta egyszerű anyagok váltják egymást. Így, belső referenciák alapján volt számolható az egyes elemek atomi koncentrációjának meghatározásához szükséges relatív érzékenységi tényezője. Ebben az esetben mindig a Si – hoz viszonyított relatív érzékenységi tényezővel számoltam. A *C/Ni*, *Si/Cr*, *Au/Si/Cr* rétegrendszereken mért atomi koncentráció – porlasztási idő profilok közül néhányat mutat a 24. ábra. Az ábrák alapján látszik, hogy nem beszélhetünk jelentős ionsugárzás indukált felületi durvulásról. Tudjuk, hogy az ionbombázás indukált felületi durvulás függ az eltávolított rétegvastagságtól, mégpedig általában növekszik, míg egy bizonyos anyagmennyiség eltávolítása után telítésbe is mehet [62, 63].



24. ábra: Tipikus AES mélységi profilok porlasztási idő skálával. a) 3x(C/Ni)/Si multiréteg mintán; b) Au/(Si/Cr)x3/Si multiréteg mintán. A bemutatott mélységi profilok elkészítéséhez 1 keV energiájú és 80° beesési szögű Ar^+ ionsugarat alkalmaztam.

Így, ha felületi durvulás lépett volna fel a Si hordozó felé haladva egyre szélesebb réteghatár átmeneteket jelennének meg, de amint ez látható nem következett be. Ezért nem volt indokolt AFM vizsgálatok elvégzése.



25. ábra: Tipikus AES mélységi profilok az algoritmussal számolt mélység skálával.
a) 3x(C/Ni)/ [Si hordozó] multiréteg mintán; b) Au/(Si/Cr)x3/[Si hordozó] multiréteg mintán.

A koncentráció – porlasztási idő profilokat a 3. 2. pontban tárgyalt algoritmus alapján kiértékelve, azaz konvertálva a porlasztási időt mélységgé, a 25. ábrán mutatjuk. Az algoritmus alkalmazásával automatikusan megkapjuk az anyagok relatív porlasztási hozamát. Ebben az esetben, az algoritmusban C/Ni minták esetén az Y_{Ni} és Si/Cr minták esetén Y_{Si} egynek választottuk. A kapott görbéről leolvasható az átmenetek szélessége (mélységi felbontás) is. A mélységi felbontás normális eloszlást leíró átmenetek esetén a 84 – 16 % pontok közötti távolsággal jellemezhető. Ezeknél a mintáknál a rétegvastagsághoz képest éles 2 – 3 nm átmenetet figyelhetünk meg. Itt algoritmusunk fő szerepe erre a 2 – 3 nm változó tulajdonságú anyagra korlátozódik.

Az 1. táblázat összefoglalja a meghatározott relatív porlasztási hozamokat. A vonással kitöltött helyek esetében nem volt mérés.

1. Táblázat

Ionsugár beesési szög, °	Y_C/Y_{Ni}	Y_{Cr}/Y_{Si}	Y_{Au}/Y_{Si}
22	-	1.48	-
29	-	1.32	-
36	-	1.33	-
49	0.52	1.27	-

62	-	1.34	-
71	-	1.11	-
74	0.63	-	-
76	-	0.84	-
78	0.76	-	-
80	-	0.74	1.11
82	-	0.73	-
84	1.44	-	-
86	-	0.61	-
87	-	0.65	-
88	1.32	-	-

Az eredmények alapján elmondhatjuk, hogy a szén porlasztásának effektivitása, vagyis a porlasztási hozama számottevően megnő igen súrlódó ($>82^\circ$) ionsugár beesésnél. Ez igen meglepő eredmény, hiszen az irodalom alapján a C egy tipikusan rosszul porló anyag volt mondható. Ez valószínűleg azért volt így, mert a legtöbb kísérletben az ionsugár beesési szöge $0^\circ - 60^\circ$ közé esik [9]. A 82° feletti nagy C porlasztási effektivitást az elméleti előrejelzésekkel a továbbiakban összehasonlítottam. Ismerve a szimulációs modell alapjait, az egyezés vagy nem egyezés mértékéből esetleg levonhatunk kvalitatív következtetéseket a hirtelen C porlasztási hozamnövekedésre.

A Si/Cr rétegrendszer esetében a Ljubljani együttműködés segítségével igen széles szögtartományban határoztam meg a relatív porlasztási hozamokat. Itt megállapíthatjuk, hogy a beesési szög növekedésével erősen csökken a króm szilíciumhoz viszonyított porlasztási hozama. Érdekes, hogy a mért AES mélységi profilok nem mutattak számottevő ionbombázás indukált felületi durvulásra utaló jelet, amely mint tudjuk, létrejöhet az erősen különböző porlasztási hozamok miatt [64].

Au/Si porlasztási hozamarányát kizárólag 80° ionsugár beesési szögnél határoztam meg. Ezt az eredményt más vizsgálat elvégzéséhez terveztük felhasználni (hasonló, mint [57]). Ugyanakkor két szempontból is érdemesnek tartottam közölni. Az egyik, hogy Au porlasztási hozamra az én munkám megjelenéséig csak egy irodalmi adatot találtam ilyen porlasztási paraméterek mellett [9]. Másrészt, mivel az Au egy nagy rendszámú nehéz elem (az argonhoz képest) ezért itt is érdekesnek tartottam megvizsgálni az előrejelzések működőképességét.

Ebben az alfejezetben közölt kísérleti adatok pontossága általában 2 – 10 % - ra becsülhető a megismételt kísérletek alapján. A megismételt kísérletek átlagos száma 2 – 5 között volt.

Ta(-C)/C, C/Ta(-C) [s4, s5] és C/Ta/C [s4, s6] sorrendfüggő szélességű keveredést mutató réteg párok. A relatív porlasztási hozam meghatározása, az algoritmus alkalmazhatósága.

Korábbi kísérleteink már felhívták a figyelmet arra a furcsa jelenségre, hogy egyes anyag párok esetén (Co/Ti, Pt/Ti) úgynevezett aszimmetrikus, sorrendfüggő atomi keveredés történik kisenergiás ionsugárzás hatására [53, 23]. Erre a viselkedésre egyelőre nincs egyértelmű magyarázat az irodalomban. A Pt/Ti esetében a bináris ütközési modellek nem írják le az adott réteg pár sorrendfüggő keveredését, a molekuladinamikai leírás is csak kvalitatív magyarázatot adott. A Pt/Ti rétegpár vizsgálatánál megszerzett tapasztalatok alapján terveztük meg a Ta – C vékonyréteg mintákat számítva a még nagyobb atomtömeg különbség által okozott aszimmetrikus keveredésre. Az első elvégzett kísérletek alapján várakozásaink beigazolódtak, a felvett AES mélységi profilok kimutatták az eltérő réteghatár szélességeket. Az eltérő vastagság kvantitatív kimutatásához jó mélységskála számításra van szükségünk, így alkalmaztuk a korábban kifejezetten erre a célra kidolgozott algoritmusunkat.

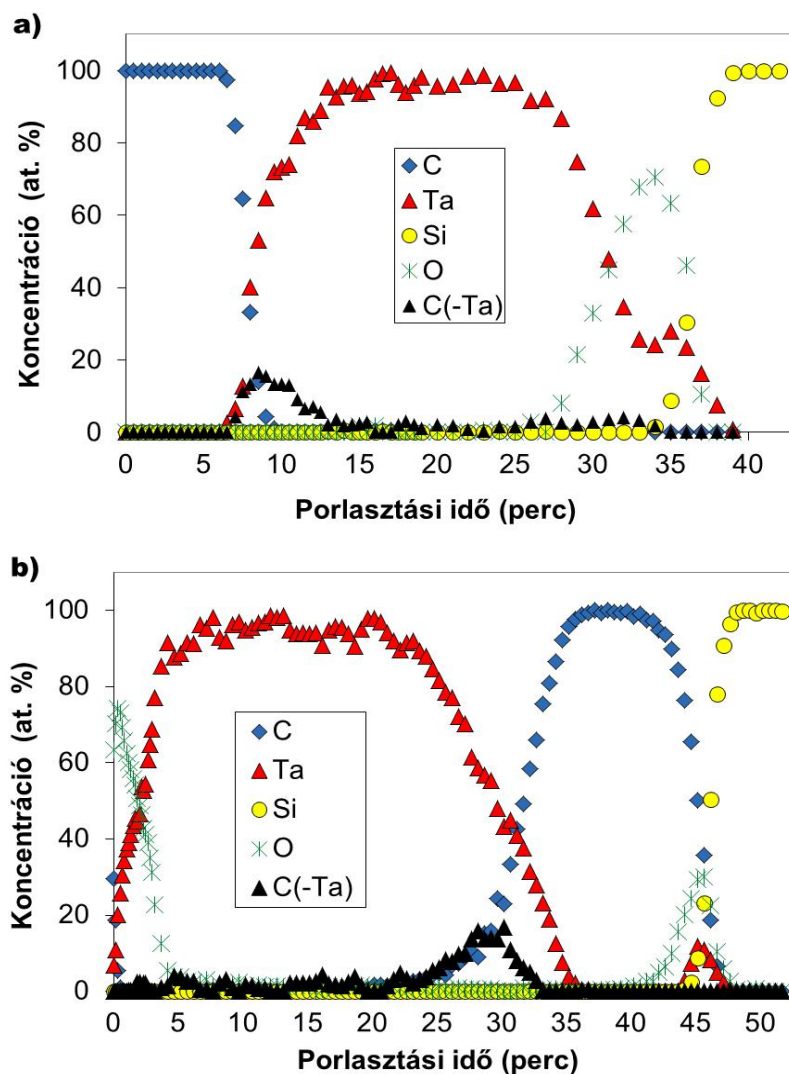
Az első kísérletsorozatot egy enyhe tantál – karbid szennyezést tartalmazó mintasorozaton végeztük, aztán az elkészült tiszta mintákon megismételtük a teljes kísérletsorozatot. Így tulajdonképpen egyszerre tanulmányoztuk, miként reagál kiértékelési metodikánk egyes nem szokványos esetekben, és hogyan változnak a meghatározott relatív hozamok.

A relatív porlasztási hozam meghatározására kifejlesztett algoritmus kritikus pontja a porlasztási tulajdonságok megváltozásának helyes figyelembe vétele ionsugár indukált keveredés esetén. Nyilvánvalóan minél kisebb az ionsugárzás indukált rétegátmenet kiszélesedés annál kevesebb az algoritmus által bevezetett hiba. Így az algoritmus ellenőrzéséhez tökéletesnek bizonyultak a Ta – C vékonyréteg párok, melyeknél ugyanazon anyagpár mellett eltérő szélességű atomi kevert réteg hozható létre, ugyanolyan ionbombázási feltételek esetén is.

A rétegeket vékonyra, 10 – 20 nm körüli vastagságúra terveztük, mivel az ionindukált durvulás valószínűsége egyre nagyobb az eltávolított vastagsággal. A valódi vastagságokat az előzőleg elkészített TEM vizsgálatokból megtudtuk. A TEM vizsgálatok alapján a becsült kezdeti rétegátmenetek 0.6 nm szélességűek voltak, tehát atomosan simák. Így megállapíthatjuk, hogy a következőkben AES mélységi feltérképezéssel mért, ennél nagyobb

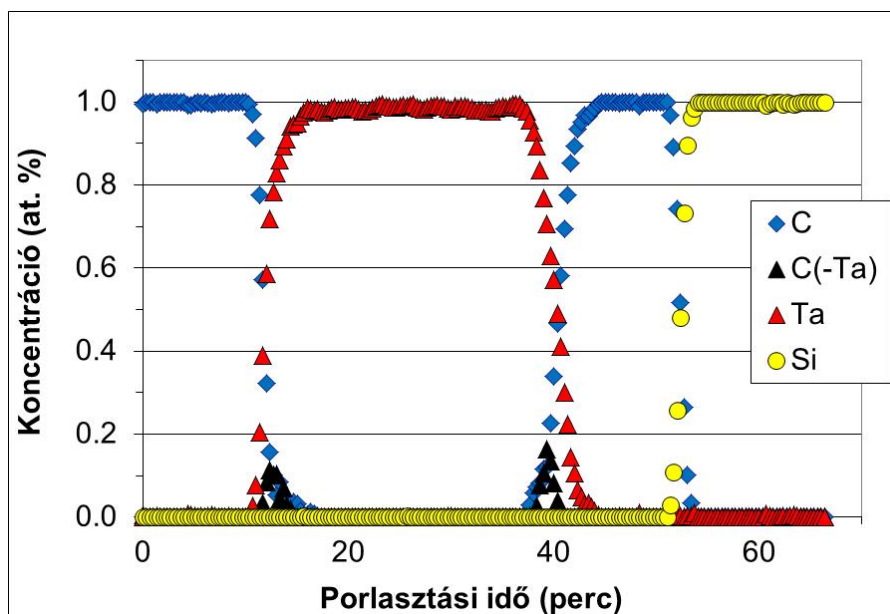
réteghatár kiszélesedések mindenképpen ionbombázás indukált hatások és az AES módszer által mutatott látszólagos kiszélesedés végeredménye. Az elektron transzport folyamatok miatti látszólagos kiszélesedést külön megvizsgáltam.

Először vizsgáljuk meg a mért koncentráció eloszlás profilok porlasztási idő függését, melyet $Ta(-C)/C$, $C/Ta(-C)$ esetére az 26. ábrán, $C/Ta/C$ típusú minta esetére pedig a 27. ábrán láthatunk. A koncentrációsámításhoz ugyanúgy, mint az előzőeknél, a relatív érzékenységi tényezők módszerét használtam. Ebben az esetben külön gondot okozott a $Ta(-C)/C$, $C/Ta(-C)$ típusú minták esetében a Ta rétegben és minden mintatípus esetébe a határatmeneteken detektált, szennyezőként megjelenő karbid kötésű szén. Ennek jelenlétét jól mutatta a karbid kötésre jellemző Auger elektron spektrum csúcsalak (lásd 28. ábra). Az elsődleges probléma a szénből és karbidból származó szén Auger jelek szétválasztás volt. Ezt faktoranalízises csúcsillesztéssel standard spektrumok felhasználásával sikerült megoldanom. Az elkülönített karbid jelhez TaC összetételt feltételezve számoltam koncentrációt. Az ennek megfelelő érzékenységi tényezőt, egy standard spektrumokat tartalmazó adatbázisból [65] vettem. Az így számított karbid koncentráció a Ta rétegben néhány atomi százalék, a határatmeneteken pedig 10 – 15 % volt. A határatmenetnél megfigyelhető többlet karbid eredetével nem foglalkoztam, de hatását integráltam a számítási algoritmusba. Ez annyit jelent, hogy az AES mélységi profil alapján számolt Ta atomok számából minden esetben kivontam azon Ta atomok számát, amelyek a feltételezett TaC összetétel mellett C atomhoz kötődhetnek.

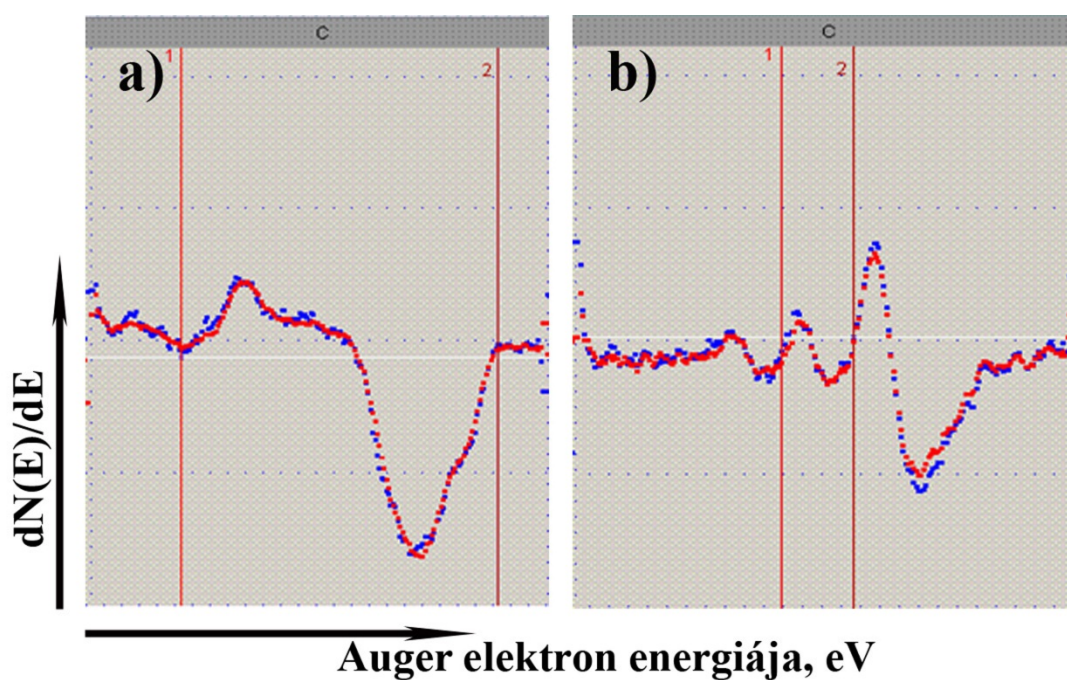


26. ábra: Tipikus AES mélységi profilok porlasztási idő skálával. a) $C/Ta(-C)$ sorrendű mintán; b) $Ta(-C)/C$ sorrendű mintán. A bemutatott mélységi profilok elkészítéséhez 1 keV energiájú és 80° beesési szögű Ar^+ ionsugarat alkalmaztam. Megfigyelhető TaC szennyezés.

Ahhoz, hogy a mélység kiszámításánál algoritmusunkban figyelembe vegyük a TaC eltávolítását is, bemenő paraméterként porlasztási hozamot kell hozzá rendelnünk a Ta –hoz képest. Irodalomból ismeretes ugyan, hogy összetett anyagok porlasztása igen bonyolult folyamat, több alapfolyamat szuperpozíciója [66]. Szerencsénkre a TaC mennyisége nem számottevő így esetleges pontatlan figyelembevétele nem okozhat súlyos hibát. Mivel más kiút nem mutatkozott, ezért a TaC porlasztási hozamát SRIM szimulációval számoltam a megfelelő porlasztási paraméterek megadásával. A program nem megfelelően számolta a TaC sűrűségét, így célszerűbbnek láttam minden esetben, az irodalomban fellelhető kísérletileg meghatározott tömbi TaC (45.2 atoms/nm^3) sűrűségét megadni bemeneti sűrűségként.

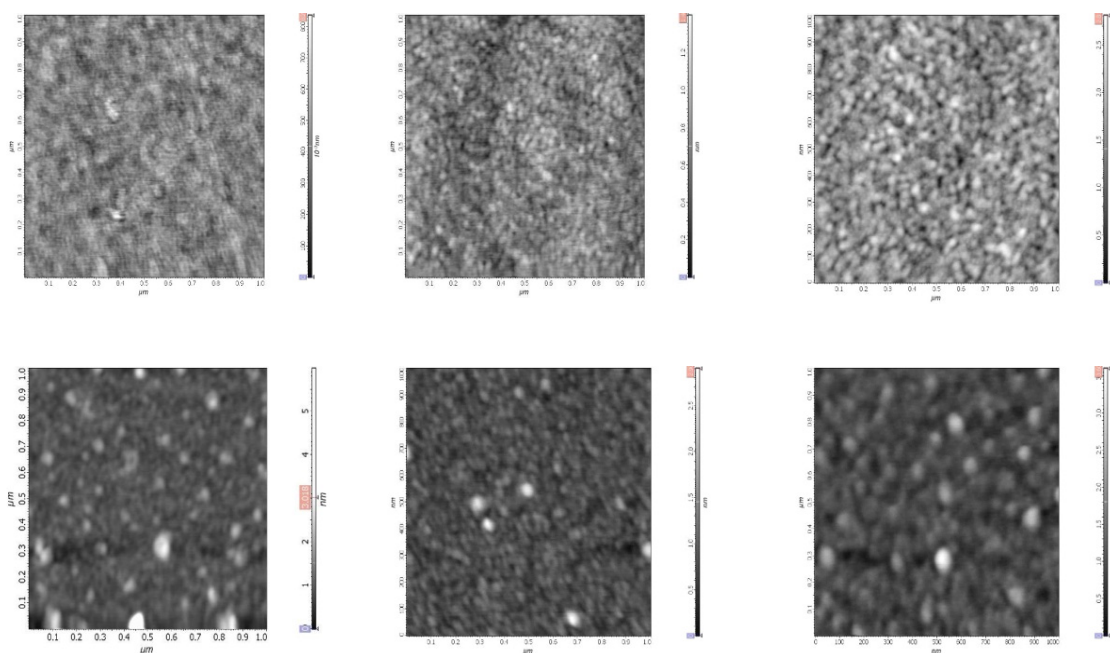


27. ábra: C/Ta/C minta AES mélységi profilja porlasztási idő skálával. A bemutatott mélységi profilok elkészítéséhez 1 keV energiájú és 80° beesési szögű Ar^+ ionsugarat alkalmaztam. TaC fázis csak a réteghatár átmeneteken észlelhető.



28. ábra: A szén mért Auger- elektron csúcsai (272 eV): a) grafítkötésre jellemző jelalak; b) karbid kötés jelalakja. Szétválasztás: a két jel lineáris kombinációjából kikeverhető az aktuális detektált jel.

Mivel algoritmusunk kifejezetten csak ionindukált keveredést feltételez ezért meg kell bizonyosodnunk arról, hogy a tapasztalt kiszélesedés nem-e az ionindukált felületi durvulás eredménye. Az ionbombázás indukált durvulás mértékének ellenőrzésére AFM vizsgálatokat végeztünk. A felületi durvaságot a mért RMS (négyzetes középérték) értékekkel jellemeztem. Az AFM vizsgálatokat az ionbombázás több stádiumában elvégeztük mindkét mintatípuson. A mérés eredményeit a 2. táblázat és a 29. ábra mutatja. Az AFM felvételeken jól látható, hogy nincsenek különösképpen kiemelkedő, nagy magasság/vastagság arányú ionbombázás indukált felületi elváltozások egyik mintatípuson sem. Helyenként láthatók ugyan elváltozások, de ezek sűrűsége elhanyagolhatóan kicsi a mérési területünkhöz (elektronsugár átmérője) képest.



29. ábra: C/Ta/Si sub –felső sor, Ta/C/Si sub – alsó sor mintatípusokról készült 1x1 μm területről készített AFM felvételek. A sorrend balról jobbra a következő volt: érintetlen felület, első határfelület, utolsó határfelület.

2. Táblázat

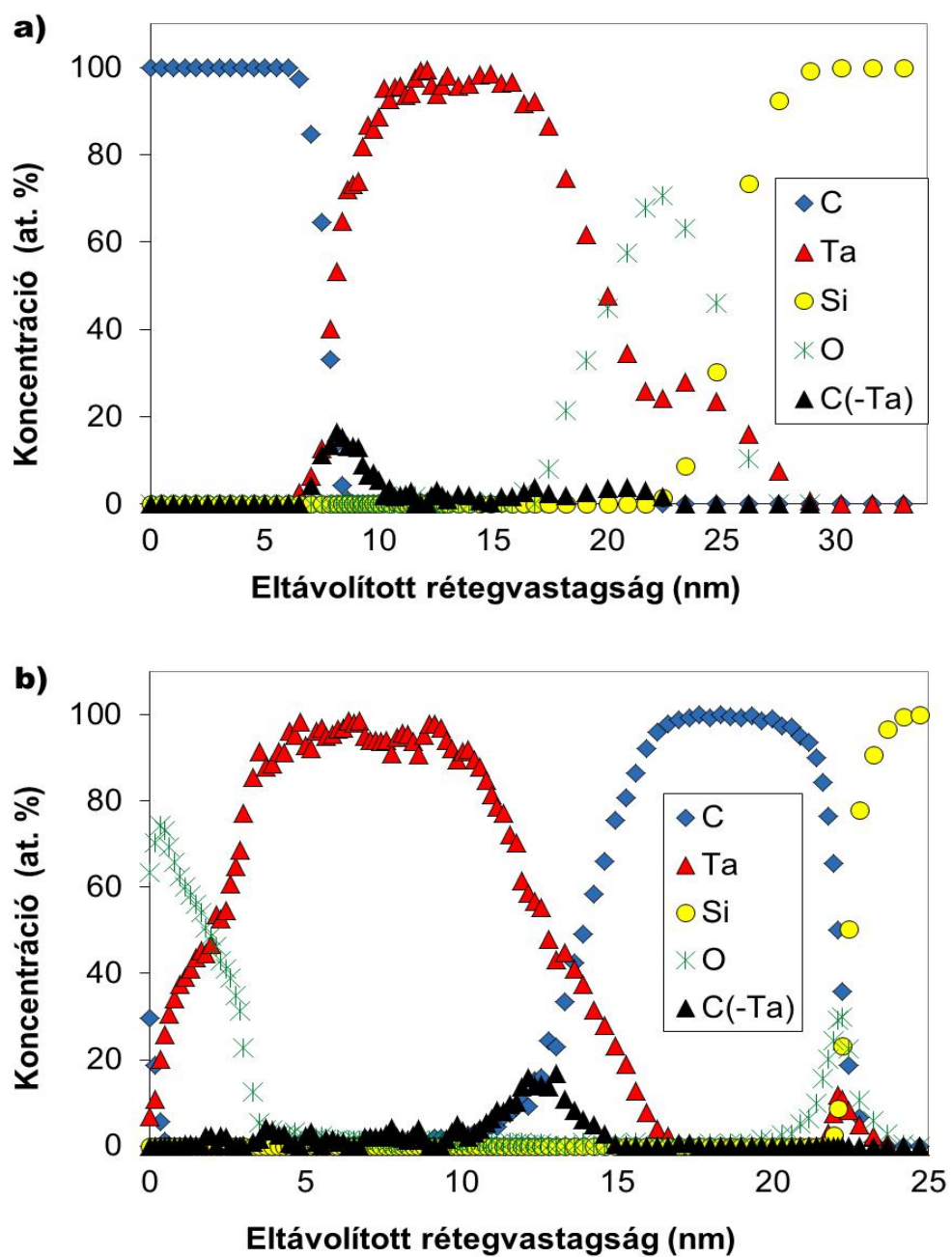
Mérés helye	RMS (nm) C/Ta/Si sub típusú	RMS (nm) Ta/C/Si sub típusú
Érintetlen	0.11 ± 0.07 nm	0.42 ± 0.07 nm
Első átmenet	0.16 ± 0.07 nm	0.28 ± 0.07 nm
Utolsó átmenet	0.36 ± 0.07 nm	0.47 ± 0.07 nm

A 2. táblázat szerint a C/Ta/Si sub mintatípus elenyésző ionbombázás indukált durvulást mutat a mélység előrehaladtával. Ezen a mintatípuson az utolsó rétegátmenet durvasága magyarázható a Ta réteg kristályainak orientációfüggő porlódásával. Ez a folyamat enyhén a

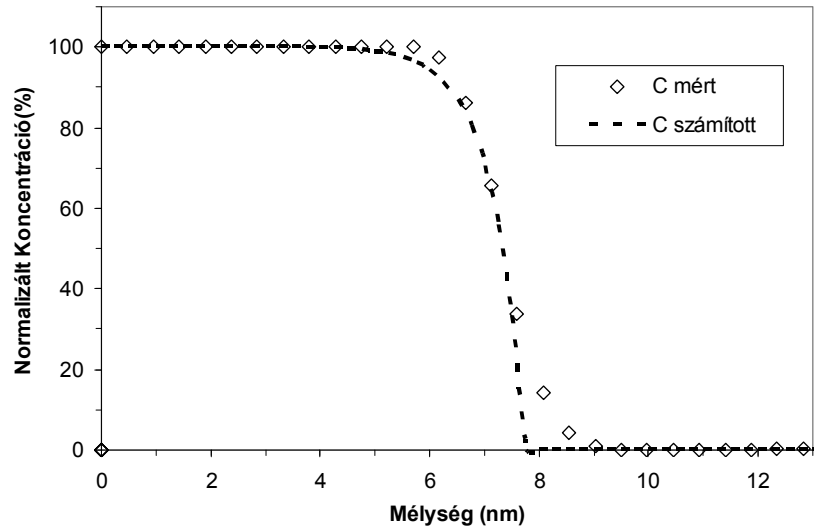
mintaforogtatás ellenére is jelentkezik. A másik, Ta/C/Si sub mintatípus nem mutat semmilyen durvulási tendenciát, figyelembe véve a becsült 0.07 nm hibahatárt.

Mivel az ionindukált durvulás mértéke elhanyagolható alkalmazhatjuk az algoritmusunkat. Példaként a 26. ábrán bemutatott mért koncentráció – porlasztási idő görbékből számított a 30. ábrán mutatott koncentráció – mélység eloszlásokat kapunk a két mintatípusnak megfelelően. A görbékről leolvasható az átmenetek szélessége (a koncentráció 86 – 14 % pontjainak távolsága), amelyek 1.5 nm és 4.4 nm adódtak a C/Ta és Ta/C mintatípusok esetében, megfelelően demonstrálva ezzel az erősen sorrendfüggő aszimmetrikus keveredést.

A C/Ta típusú rétegpáron mért mélységi felbontás (réteghatár szélessége) összemérhető az információt hordozó Auger elektronok áthaladása közbeni csillapítás gyakorlati úthosszával (Practical Electron Attenuation Length). Így külön meg kellett győződnöm arról, hogy a mért réteghatár kiszélesedést ion indukált vagy elektron transzport folyamat okozza. Ezt úgy ellenőriztem, hogy a C/Ta réteghatáron lépcsőfüggvény szerű átmenetet feltételeztem. Ezután a lépcsőfüggvény minden pontjának értékét korrigáltam az elektron áthaladási csillapítás által okozott intenzitás csökkenéssel. A korrekcióhoz a PEAL értékeket a National Institute of Standards and Technology (NIST) adatbázisából [67] vettem. Az eredményeket a 31. ábrán mutatom; eszerint csak 0.7 nm kiszélesedés várható a véges elektron szabad úthossz miatt. Ez az érték kisebb, mint a mért 1.5 nm kiszélesedés, tehát ezen a felületen is van ionindukált keveredés (a durvaság ennél kisebb mértékű) csak sokkal kisebb, mint a másik határfelületen.

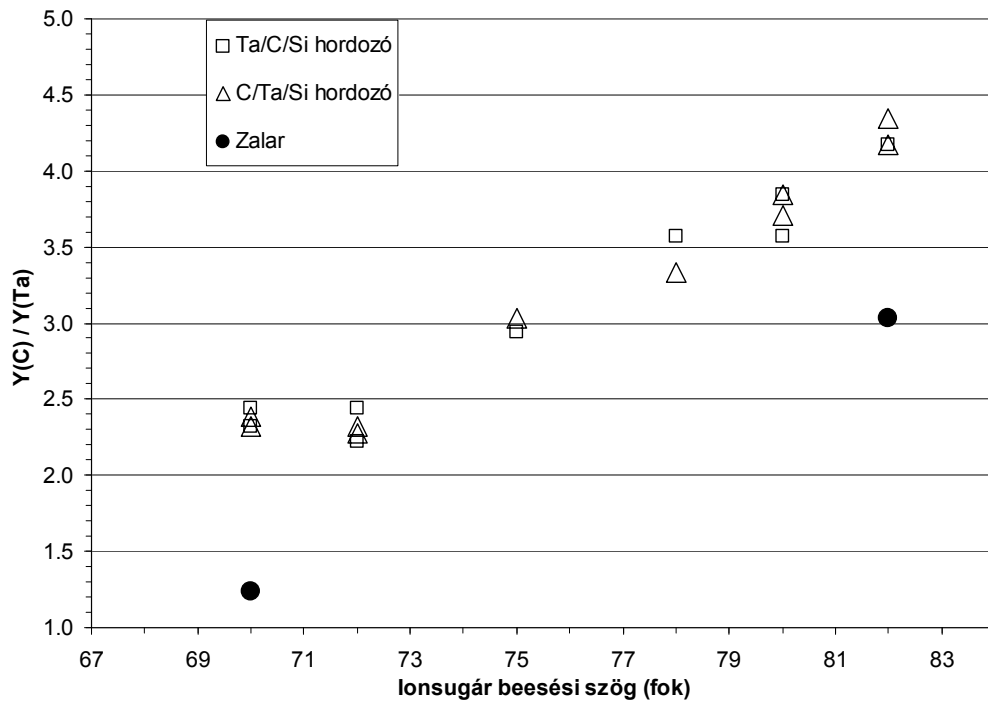


30. ábra: A 25. ábrán bemutatott mérések mélységskálával ellátott változatai az algoritmus alkalmazása után; a) C/Ta sorrendű mintán; b) Ta/C sorrendű mintán.



31. ábra: A 80° ion beesési szögnél *mért* és egy lépcsőfüggvényen számolt C jelek összehasonlítása.

A 32. ábrán láthatjuk a meghatározott relatív porlasztási hozamokat mindkét mintatípuson az ionsugár beesési szög függvényében ábrázolva.



32. ábra: A saját mérések alapján meghatározott relatív porlasztási hozamok és Zalar [68] által mérték vastag, 60 nm vastagságú rétegeken.

A 32. ábrán jól látszik, hogy a 2 – 4 % szórást tekintve a kapott eredmények megegyeznek a C/Ta és a Ta/C rétegsorrendű mintákon. Elmondhatjuk tehát, hogy a relatív porlasztási hozam meghatározására kifejlesztett algoritmusunk képes kezelni az ionindukált keveredés által okozott réteg határátmenet kiszélesedést. Megfigyelhetjük még, hogy a szén relatív porlasztási hozama erős növekedést mutat az ionbeesési szög növekedésével. Ezt a jelenséget már korábban is megfigyelhettük a szén esetében [s1] amikor porlasztási hozamát a nikkeléhez képest határoztuk meg.

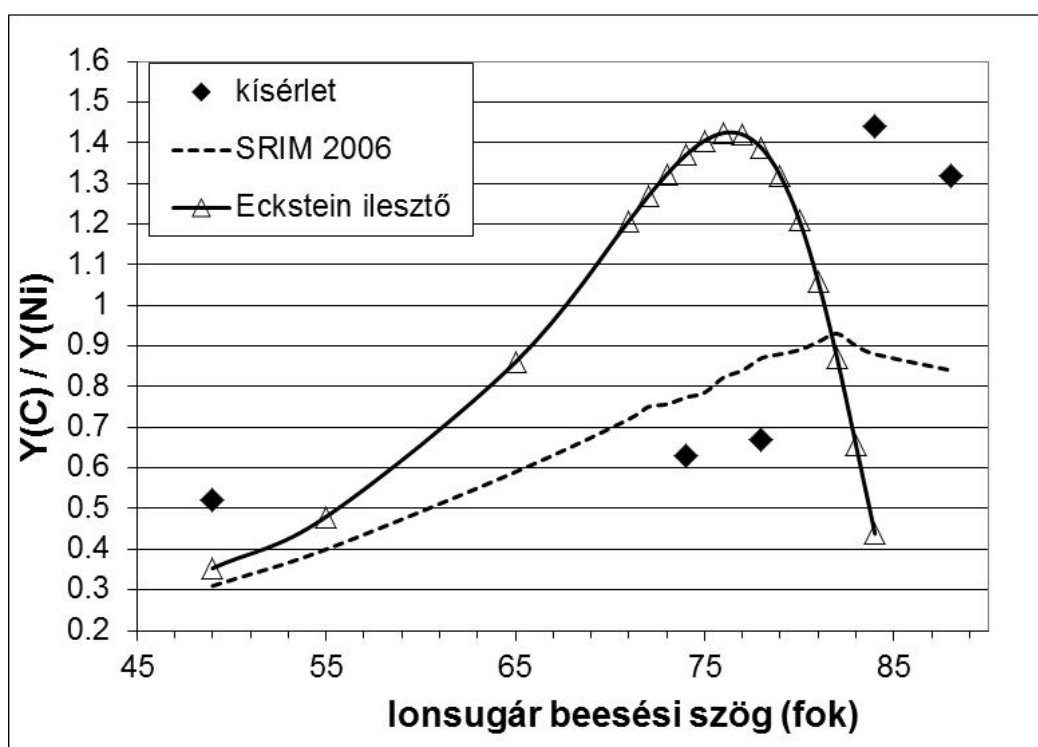
A 32. ábrán ábrázoltam Zalar által közölt porlasztási hozam értékeket is [68]. Ezt a mérést Zalar vastag rétegű C/Ta mintákon végezte, természetesen alkalmazva az általa bevezetett mintaforgatási technikát. Látható módon az eredményi erősen eltérnek a mieinktől. Mi lehet ennek az oka? A magyarázatot Zalar adta meg; a lényege az, hogy a forgatás sem tudja a felületi morfológia kialakulását minden esetben megakadályozni. Az ionporlasztásnál furcsa tulajdonságokat mutató szén például az adott kísérletben behullámosodott [68], nagyon vastag mintát vizsgáltak. Az eltávolított anyagmennyiséggel viszont, növekszik a felületi durvulás valószínűsége, amit a különböző visszaszorító intézkedések sem képesek effektíven kezelni vastag minta esetében. Az viszont már nem meglepő, hogy egy durva felületen mért porlasztási hozam helytelen értéket ad. Ezt a példát azért kellett említeni, hogy felhívjam a figyelmet arra, hogy a durvulást akkor is kell ellenőrizni, ha úgymond jó porlasztási paramétereket alkalmazunk.

3.5. A vizsgált anyagokon kísérletileg meghatározott relatív porlasztási hozamok összehasonlítása a szimulációkból kapott értékekkel.

A szimulációk elvégzése sokkal egyszerűbb és olcsóbb, mint a fenti igen drága kísérletek. Ezért minden esetben megvizsgáltuk a rendelkezésre álló szimulációk, vagy analitikus formulák által adott eredményeket. Az irodalmi ismertetőben megismerkedhettünk a leggyakrabban használt szimulációkkal és egy ugyancsak előrejelző, többparaméteres illesztő módszerrel. Mindkét módszer alapja a Boltzman féle transzport egyenlet megoldása bináris ütközések esetére. Használhatóságuk jól ismert nagyobb ionenergiákon és/vagy meredekebb ionbeesési szögeknél. Ugyanakkor érdemesnek tartottam ellenőrizni hatékonyságukat a mi kísérleti paramétereink mellett.

Először a C/Ni vékonyréteg rendszernél végeztem a SRIM2006 [8] és az Eckstein féle [55] számítások sorozatát. A SRIM szimulációkban mindig az alap bemenő paraméterek használtam, azaz a program által beállított sűrűséget, felületi és térfogati kötési energiát. A C/Ni rétegrendszer esetében a kísérletekből kiderült, hogy a szénnek számottevően megnő a

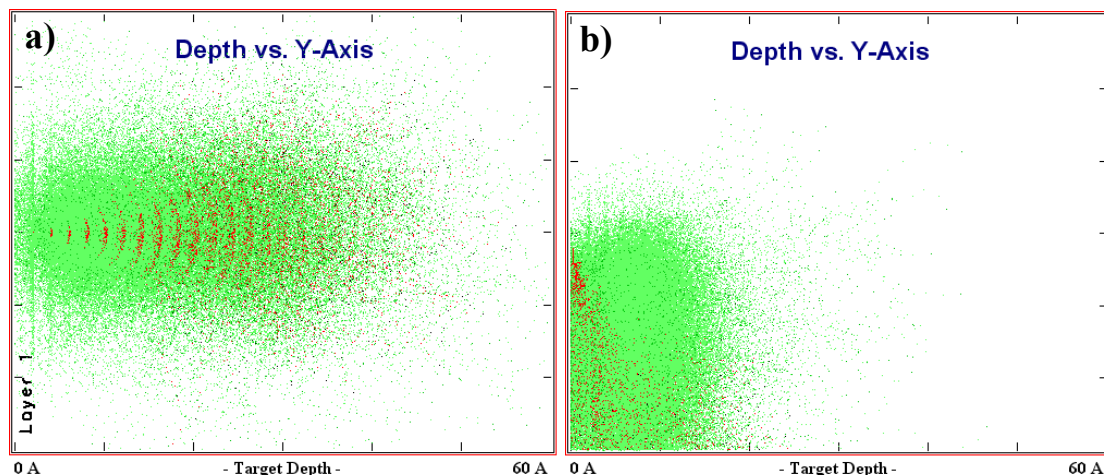
porlasztási hozama 82° feletti ionbeesési szögeknél. Az említett kért módszer kvalitatív egyezést mutat. Mindkettő jósolja a C porlasztási hozamának növekedését a szög növekedésével. Ugyanakkor a számszerű egyezés rossz, ahogy az a 33. ábrán látszik, ami a mérések a SRIM szimulációk és az Eckstein féle illesztő függvénnyel kapott eredményeket mutatja. Az ábra szerint a porlasztási hozam maximuma a SRIM szerint praktikusan megegyezik azzal, amit a kísérlet mutat, de az aktuális érték 30-80 %-al rossz. Sokkal érdekesebb az Eckstein közelítés eredménye. Ez az egyenlet a porlasztási hozam szögfüggését illeszti több paraméter segítségével. Ezeket a paramétereket (f, b, c, stb.) megtalálhatjuk egyes anyagokra és ionenergiákra vonatkozóan W. Eckstein [9] könyvében. Behelyettesítve az egyenletbe, megkapjuk a teljes porlasztási hozam szögfüggést. Az Eckstein egyenlet által számolt görbe szinte jó, csak a porlasztási hozam maximum 15° -kal kisebb szögnél van. Azt gondoljuk, hogy ez a különbség talán jobb paraméterezéssel eltüntethető.



33. ábra: A számított és mért relatív porlasztási hozamok összehasonlítása C/Ni rétegrendszer esetén.

Mindenesetre az egyezések arra hívják fel a figyelmet, hogy a szimulációk lényegileg jó feltételezésekből indulnak ki. Így azokat a jelenség kvalitatív leírására felhasználhatjuk.

A 34. ábrán a SRIM szimuláció által számolt Ar^+ ion behatolási pályákat (kaszkádokat) mutatjuk 0° és 82° ionbeesési szögek és 1 keV energiájú Ar^+ ionok esetére. Az ábrákon az Ar^+ ionok útját láthatjuk a mélység függvényében egy Y – irányban metsző síkkal.

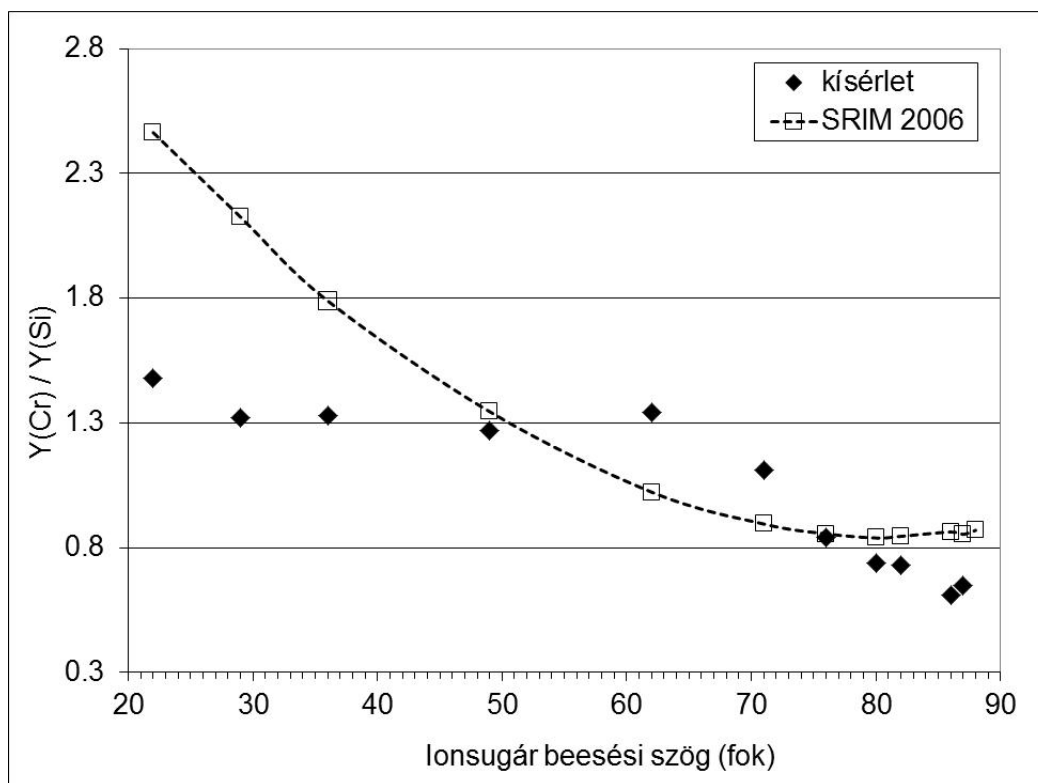


34. ábra: A végrehajtott SRIM 2006 szimulációk képei szén ionporlasztása esetére. a) 0° ionsugár beesési szög esetében; b) 82° súrló ionsugár beesési szög esetében. Láthatjuk az ionok pályájának végeit – zöld pöttyök.

Az eredmények alapján láthatjuk, hogy míg a merőleges ionbeesésnél az ionok útja mélyen benyúlik a felület alá, addig a 82° belépési szögnél az ionok egészen a felület közelében haladnak hosszan. Ez azért van, mert a szén atomtömege kicsi az Ar^+ ionokéhoz képest és így az az ütközéseknél csak kicsit térül el. Így a súrlódó beesésű argon ionok a felület közeli szén atomoknak adják át energiájukat. Ahogy említettük korábban porlódás praktikusán csak az első két atomrétegből történik, tehát így megnő annak valószínűsége, hogy az ütközésben résztvevő szén atom porlódni fog [s1]. Ez lehet a magyarázat a súrló ionbeesés mellett megnövekedett porlasztási hozamnak.

A következő kísérletsorozatot a Si/Cr vékonyréteg rendszeren végeztem. Ebben az esetben, szélesebb szögtartományban és több ponton sikerült meghatározni az $Y(\text{Si}) / Y(\text{Cr})$ relatív porlasztási hozamokat. A vizsgált szögtartományon belül megállapítható, hogy a kísérletileg meghatározott relatív porlasztási hozam szögfüggése ebben az esetben két szakaszra bontható. Az első $22^\circ - 60^\circ$ mérési hibán belül majdnem vízszintes szakasz, amit hirtelen töréssel $62^\circ - 87^\circ$ között egy meredeken csökkenő szakasz követ. Összehasonlítva a kísérleti eredményeket a megfelelő SRIM 2006 szimuláció eredményeivel változó eltéréseket látunk (35. ábra) úgy tűnik, hogy a SRIM 2006 szimuláció a várakozásokkal ellentétben a kis beesési szög tartományban igen rossz eredményeket ad. Ugyanakkor a SRIM 2006 szimuláció

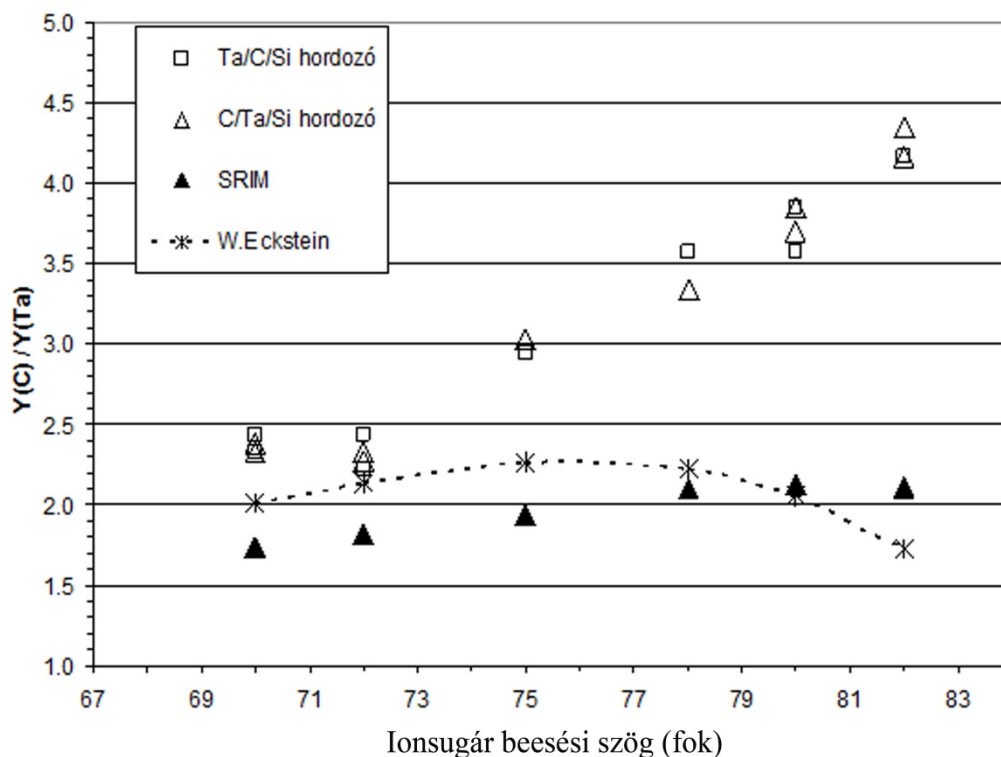
és a mérés jobb egyezést ad a $82^\circ - 87^\circ$ szögtartományban. Ez ellentétben van a C/Ni esetében tapasztaltakkal. Itt kiemelném, hogy mellőztem a SRIM 2008 verzió használatát, mivel az új verzió biztosan nem jól írja le az ionok fékezésését $Z < 14$ rendszámú elemek esetén [69], ugyanis a fékezési hatáskeresztmetszet számítása nem működik jól $Z < 14$ esetén.



35. ábra: A számított és mért relatív porlasztási hozamok összehasonlítása Si/Cr rétegrendszer esetén.

Sajnos az Eckstein – féle egyenletet nem sikerült alkalmaznom, mivel nem találtam megfelelő illesztő paramétereket Cr anyagra az alkalmazott 1 keV ionenergián.

Au/Cr anyag pár esetére csak egyetlen ionbeesési szög mellett van kísérleti adatom. Ugyanakkor mivel ez akár irodalmi adatnak is tekinthető, így nem hagyhattam ki összehasonlítását a SRIM 2006 kóddal számolt eredménnyel. A szimulációval számolt $Y(\text{Au})/Y(\text{Cr})$ relatív porlasztási hozam értéke 80° ionsugár beesési szög mellett 1.29 volt. Az 1. táblázatban közölt kísérletileg meghatározott relatív porlasztási hozamtól ($Y(\text{Au})/Y(\text{Cr})=1.11$) való relatív eltérés 16 %. Az előzőekben tapasztalt eltérésekhez viszonyítva ez az eltérés kicsinek mondható.



36. ábra: A számított és mért relatív porlasztási hozamok összehasonlítása C/Ta és Ta/C réteg párok esetén.

Az elméleti előrejelzések vizsgálatának utolsó szakaszában a C – Ta anyag páron meghatározott $Y(C) / Y(Ta)$ relatív porlasztási hozamoktól való eltérést vizsgáltam meg. A 36. ábra látványosan szemlélteti a vizsgálat eredményét. Először szembetűnik az erős tendenciabeli különbség a kísérletileg mért relatív porlasztási hozam szögfüggése és a mindkét előrejelzés által jósolt értékek között. Az eltérés már 75° ionbeesési szögnél is 50% és növekszik egy 2 –szeres tényezőig. Feltűnő az is, hogy a kétféle előrejelzés eredményei igen közeli, visszatekintve a C/Ni rétegrendszerénél számolt eredményekre ez egyáltalán nem mondható el. Itt lehet egy hibás feltételezés a bináris ütközéseken alapuló modellnél. Mégpedig mivel mindkét kísérletnél közös anyag a szén, ezért feltételezhető hogy a különbség a Ni és a Ta ionbombázásának modellezésében keresendő. Esetleg a nagy atomtömeg különbség okozhat ilyen jellegű hibát a modellben. Ezek a feltételezések további vizsgálatokat igényelnének.

Összefoglalva az eddig tapasztaltakat megállapíthatunk néhány jellegzetességet az előrejelző számítások és a kísérleti eredmények összehasonlításánál. Elsőként elmondhatjuk, hogy a megvizsgált anyagok közül a szén porlasztásának viselkedését a SRIM 2006 kódú szimuláció surló szögű ionbeesés esetén kizárólag kvalitatív módon írja le jól. Másodsorban

egyértelműen megállapítható, hogy a legrosszabb kvantitatív előrejelzéseket a C/Ni és a Ta/C anyag pároknál kaptuk. Az eltérés ezekben az esetekben eléri akár a 2- szeres tényezőt is. Elfogadható eredményeket kaptunk viszont surló ionbeesésnél (50° –tól kezdve) Si/Cr és Au/Cr anyag párokra. Ezekben az esetekben az eltérések változóak a beesési szögtől függően, de az eltérések mértéke talán csak a nagy ionbeesési szögeknél méltó említésre. Mivel a megvizsgált esetekben változó eltéréseket kaptam, hol jobbat, hol meg teljesen rosszakat, ezért ilyen porlasztási körülmények között nem használhatók az előrejelzések. Biztos vagyok benne, hogy további vizsgálatok mindenképpen segítenék az alkalmazott modellek továbbfejlesztését.

Ebben az energiatartományban már elég mélyen (20 – 40) nm is nagy energia nyelődik el a bombázott anyagban, ezért maradandó egyensúlyi vagy nem egyensúlyi változásokat hoz létre az átlagos behatolási mélység környezetében. Ilyen változás például az ionbombázás indukált atomi keveredés. Ezt a folyamatot legjobban réteges szerkezeteken szemléltethetjük, azaz amikor két különböző anyag atomjai cserélnek helyet, oldatot vagy esetleg vegyületet képezve. A megváltozott tartomány egyben új fizikai tulajdonságot is eredményez. A megváltoztatott tulajdonságú anyag helyét és tulajdonságait az energiával és dózissal is hangolhatjuk. Ez fontos lehet olyan alkalmazások szempontjából, mint a fókuszált ionsugaras technika (FIB) alkalmazása mikro- és nanotechnológiai folyamatokban. A szakirodalmat tanulmányozva elég sok adatot találunk nagy energiájú ionbombázás hatására végbemenő változások leírására [70 – 72]. Ugyanakkor ritkábban találunk kísérleti forrást kis- és közepes energiájú tartományban. Különösen kevés olyan munkát találtam, amely kifejezetten a közepes energiájú ionbombázás indukált folyamatok leírására irányul. Egy kivétel, Bischoff és társai [73] átfogó munkáját, melyben 35 – 70 keV energiájú ionok porlasztását határozták meg és hasonlították össze TRIM kódú szimulációk eredményeivel. Ugyanilyen fontos megvizsgálni az alkalmazások szempontjából az ionbombázás indukált roncsolást vagy morfológiaváltozást. Ez fontos lehet egy olyan alkalmazásnál, mint a TEM mintakészítés. Itt minden esetben fontos az eredeti szerkezet megőrzése és a nem kívánatos amorfizáció elkerülése. Nemesgáz ionbombázás esetén Barna Árpád és társai [61] adják meg a követendő eljárást. Széles teret nyert a FIB – bel történő TEM – es mintakészítés, különösen azért, mert ezt alkalmazva könnyű kiválasztani a vizsgálandó tartományt. Az ionbombázás okozta problémákra Mayer és munkatársai hívják fel a figyelmet [74]. A műtermékek csökkentése érdekében felmerülhet többféle ion hatásának vizsgálata. Régebről ismert az, hogy többatomos (molekuláris) ionok alkalmazása visszaszoríthatja a nemkívánatos morfológiafejlődést [75, 76] és javíthatja a mélységi felbontást [77].

A fentebb leírtakat figyelembe véve célszerűnek tartottam megvizsgálni a FIB technikában gyakran alkalmazott 20 keV illetve 30 keV energiájú ionok által indukált keveredés mértékét és viselkedését az ionbombázás paramétereinek függvényében. A 30 keV ionbombázás hatásmechanizmusának megismerése reményében a kísérletileg mért AES mélységi profilírozás eredményeit összehasonlítottam a TRIDYN szimuláció eredményeivel. Egyben megvizsgáltam és összehasonlítottam többféle ion hatását is.

1. A 30 keV energiájú Ga⁺ ionok által indukált atomi keveredés

1. 1. A kísérletek előkészítése

A FIB besugárzáshoz is a IV. 3. 3. fejezetből már jól ismert Si1(42.3 nm)/Cr1(44.2 nm)/Si2(40.4 nm)/Cr2(44.2 nm)/Si3(40.4 nm)/Cr3(46.1 nm)/[Si hordozó] kezdeti szerkezetű vékonyréteg rendszert használtuk fel. A besugárzást az intézetünkben lévő LEO 1540XB pásztázó elektronmikroszkópba épített Canion FIB Ga⁺ ionforrással végeztük el. A mikroszkóp segítségével kiválasztott 200 x 200 µm területet 30 keV energiájú a felület merőlegeséhez képest 5° alatt érkező ionokkal sugároztuk be. Az ionáram értéket 5.5 nA beállítva az besugárzás idejét mintadarabonként 40 – 1280 s tartományban változtattuk, így 25 – 820 ion/nm² közötti dózisokat kaptunk. Az egyes besugárzott Ga⁺ dózisértékek a következők voltak: 25, 51, 205, 410 és 820 ion/nm² voltak.

Kiegészítésként a megvizsgáltuk a besugárzott mintadarabok felületét atomi erőmikroszkóppal (AFM). Ebben szintén az intézetünkben lévő Nanoscope IIIa típusú AFM volt segítségünkre. Minden esetben az úgynevezett négyzetes átlag (RMS) durvaságokat határoztunk meg egy 500 x 500 nm nagyságú területen a besugárzott négyzeten belül és kívül.

A mélységi profilok felvételéhez minden esetben 1 keV energiájú Ar⁺ ionokkal porlasztottam az anyagot. Az ionok beesési szöge 82° volt minden esetben. A bombázó ionáram kísérleten belül nem változott és a mintákat minden esetben az ionbombázás indukált felületi durvulás visszaszorítása érdekében forgattuk.

1. 2. Az AFM vizsgálatának eredményei

Az AES mélységi felbontása függ a vizsgált anyag felületi durvaságától. Mint tudjuk a mélységi profilírozás közbeni felületdurvulást visszaszoríthatjuk a minta forgatásával [42] és súrlódó szögű ionbeeséssel [18] de a kezdeti durvaság csak egy adott rétegvastagság eltávolításával távolítódik el. Ezért az Auger mélységi profilok felbontását egyértelműen befolyásolja a minták kezdeti (besugárzás utáni) felületi durvasága is. Így meg kellett vizsgálnunk a Ga⁺ besugárzás utáni felületet. Az AFM méréseknél megvizsgáltunk minden mintadarabot a besugárzott területen belül. Referencia értéknek a besugárzott négyzeteken kívüli méréseket tekintettük. Az AFM mérések eredményit a 3. táblázat foglalja össze.

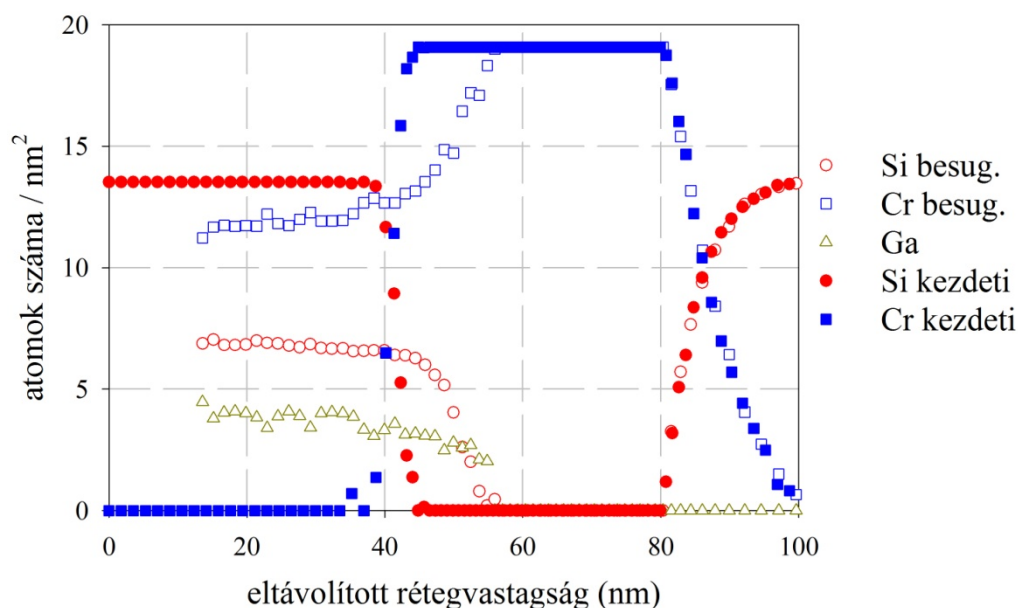
3. táblázat

Besugárzó dózis, ion/nm ²	Besugározatlan felület durvasága, nm	Besugárzott terület durvasága, nm	Besugárzás utáni fogyás, nm
25	0.3	0.2	0.5±0.2
51	0.3	0.17	1±0.2
205	0.3	0.21	4±1
410	0.35	0.7	6±1
820	0.35	0.19	10.5±1

A 3. táblázat utolsó oszlopában közölt értékek a FIB ionbombázás közben elporlasztott anyaghianyot jelzik. A kapott értékekből láthatjuk, hogy felületi durvulás helyett kismértékű simulás jött létre minden mintán. Adams és társai [78] hasonló tapasztaltak szén besugárzásánál. Ezt a jelenséget magyarázhatjuk ionbombázás által kiváltott felületi transzportjelenségekkel [79]. Egyedüli kivétel a 410 ion/nm² dózissal besugárzott minta, melynél 0.7 nm négyzetes átlagdurvaságot mértünk. Adott esetben ez a felületi durvaság még elfogadhatóan kicsi, mivel a mintáink kezdeti szerkezetéből eredő réteghatár átmenetek ennél szélesebbek (1 – 2 nm). Így a továbbiakban az Auger elektron mélységi profilok értékelésénél az Ga⁺ ionbesugárzás által indukált felületi durvulást elhanyagoltam.

1. 3. A besugárzás után mért AES mélységi profilok

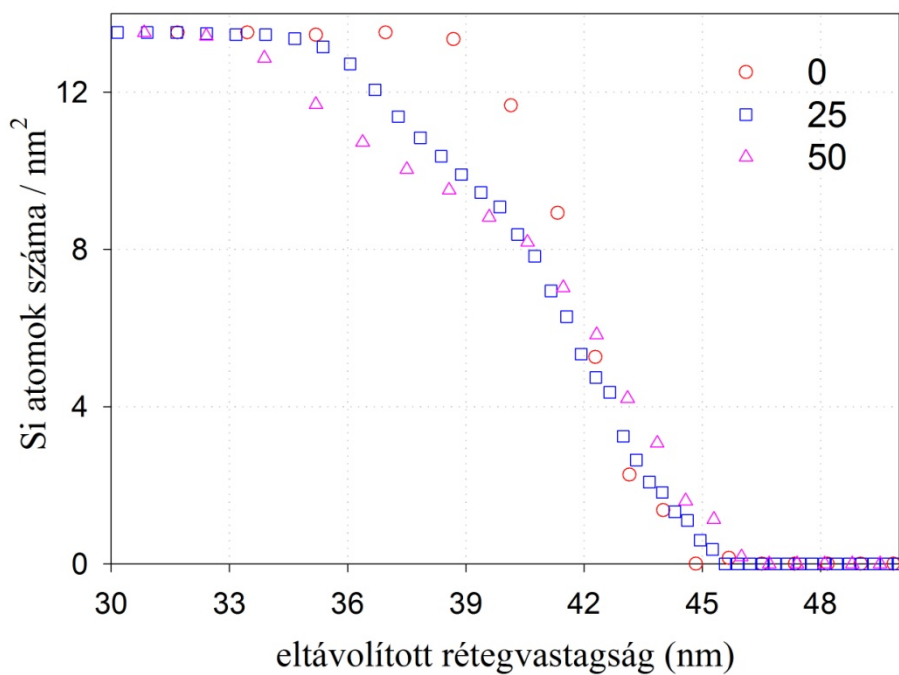
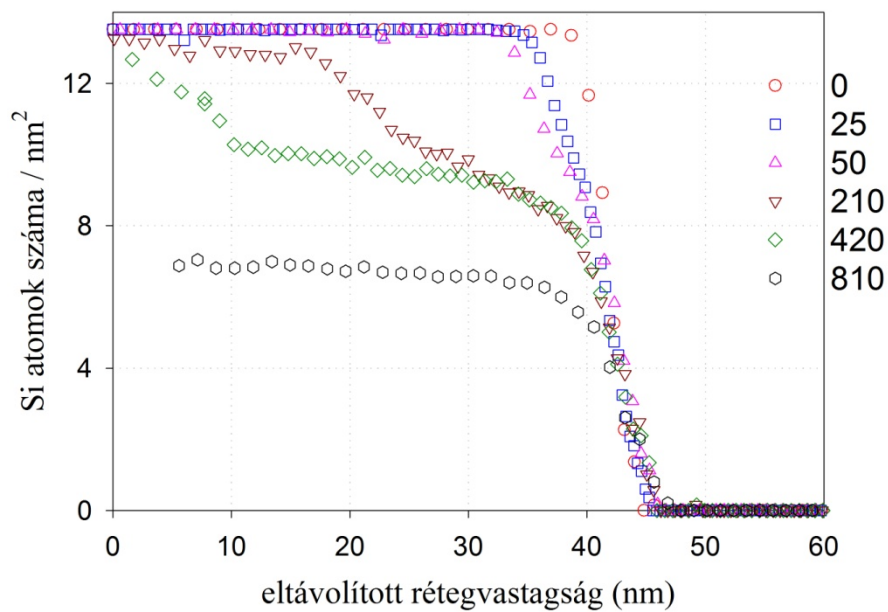
Az AES mérések során először a két szélső esetet vizsgáltam meg. Megmértem az AES mélységi profilt besugározatlan mintán és a legnagyobb 820 ion/nm² dózissal besugárzást kapott mintán. A mért AES mélységi profilokat egymásra illesztve a szabad felülettől számított 2. és 3. határátmenetek mentén tisztán látszik, hogy a Ga⁺ besugárzás kizárólag az 1. réteghatár átmenetet módosította. Ezt láthatjuk a 37. ábrán. A mélységi profilokon minden esetben a hagyományostól eltérően, atomi koncentráció helyett felületi atomsűrűséget tüntettem fel mivel ebben az esetben a besugárzás által módosított tartományban erős sűrűségváltozások vannak. Ezt az egységet használva ugyanis, a rétegben lévő atomok számának kiszámítása igen egyszerű, hiszen csak integrálnunk kell a mélység szerint. Az atomszámról, mint említettem nagy szükség van, mert azt hasonlítom össze a TEM - mel kapott értékkel.



37. ábra: Ga^+ besugárzás hatásának mélysége a legnagyobb iondózist 820 ion/nm^2 kapott mintán

Mivel a besugárzás hatása a legnagyobb dózison is a szabad felülettől számított első 60 nm mélységre korlátozódik ezért a továbbiakban csak ezzel a mélységgel foglalkoztam. A különböző dózisú besugárzást kapott mintákon mért AES mélységi profilok összehasonlítását könnyítve ezeket a Cr1/Si2 átmenetnél osszerajzolva ábrázolom. Természetes a nem besugárzott minta mélységi profiljának ábrázolása 0 nm mélységtől kezdődik. A mélységi profilokból kapott hiányzó rétegvastagságok jól egyeznek az AFM mérések eredményeivel.

A 38. a) ábrán összehasonlításként láthatjuk az összes besugárzott dózis mellett mért AES mélységi profilokat. A könnyebb áttekintés miatt a 38. b) ábra mutatja a kisebb iondózist kapott mintákon mért eredményeket. Láthatjuk, hogy már a legkisebb dózisú besugárzás (25 ion/nm^2) is okoz elváltozást a koncentráció eloszlásban. Már ebben az esetben is a réteghatár átmenet szélesség az eredeti több mint kétszeresére nőtt. Növelve az iondózist a folyamatos további kiszélesedés mellett azt látjuk, hogy egy nagyon jellegzetes réteghatár alak jön létre. Ez nem egy szokványos hibafüggvényyszerű egyszerű atomi keveredésre jellemző alak. Ezt a réteghatár alakot három különböző meredekségű részre bonthatjuk fel. A réteghatár középső szakasz a legkisebb meredekségű, tehát itt a legnagyobb az atomi keveredés. A dózis növelésével a középső szakasz egyre inkább elveszíti meredekségét és végül 820 ion/nm^2 dózison teljesen állandó koncentrációt mutat. Másrésztől az nagyon összekeveredett részt egy éles határátmenet választja el a Cr rétegtől, ez a harmadik szakasz melynek szélessége nem függött az iondózistól. Az első szakasz nem minden esetben marad meg, főleg egyre nagyobb dózisoknál fogynak el a Si atomok az atomi keveredés és a felület elfogyása következtében.



38. ábra: A Si1/Cr1 réteghatár átmenet megváltozása a besugárzott Ga⁺ dózis függvényében. a) a teljes sor 0 – 820 ion/nm² dózis között, b) kisebb dózisú besugárzások következménye

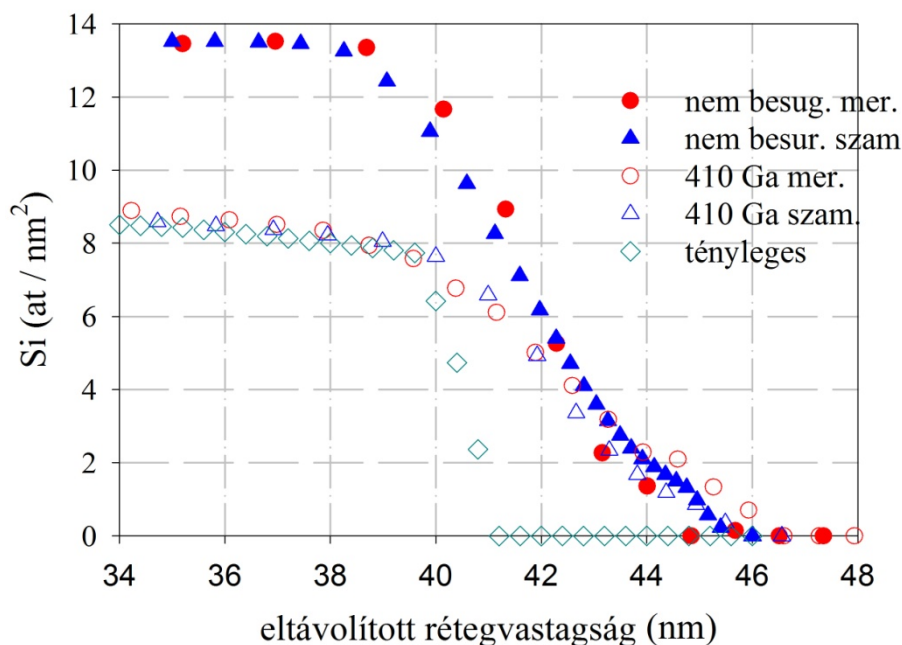
Fontos megjegyezni, hogy több ok miatt is a mért AES mélységi profil minden esetben egy bonyolult transzformációja a minta valódi koncentráció eloszlásának. Így a következőkben ezzel foglalkozom.

1. 4. Valódi koncentráció eloszlás számítása

AES mélységi profilírozás közben a vizsgált minta felületéről vékony rétegenként anyagot távolítunk el és az új felületet analizáljuk minden lépésben. Az anyagtávolítás különböző folyamatok következtében (indukált atomi keveredés, felületi morfológiafejlődés, stb.) egy megváltozott felületet eredményezhet [13, 15, 32]. A mélységi profilírozáshoz használt 1 keV energiájú Ar^+ ionok átlagos behatolási mélysége 1.5 ± 1 nm 82° ionbeesési szög mellett. Tehát az esetleges változásokat ebben a tartományban kell keresnünk. Az Auger elektron spektroszkópiai mindig egy átlagos atomi koncentrációt mér az elektronok véges kilépési szabadút hossza miatt. Ez a mélység az Si esetében 0.51 nm és Cr esetében pedig 1.09 nm [80], így az koncentráció átlagolása emiatt 1 – 1.5 nm vastagságú felületi rétegben történik. Ennek eredményeként, ha a valódi koncentráció eloszlás nem változik e mélységen belül, akkor ez az effektus könnyen korrekcióba vehető és a mért koncentráció profilok megegyezők lesznek a valódi koncentráció eloszlással. Másrészt, ha a valódi koncentráció hirtelen változik a mélységgel, mondjuk lépcsőfüggvény szerűen, akkor a mért AES mélységi profil ezt eltorzítja. Ilyenkor a mért mélységi profilból meg kell határoznunk a valódi koncentráció profilt. Láthatóan a 38. ábrán a Ga^+ ionbombázás után létrejött kevert szakaszt egy meredek szakasz választja el a Cr rétegtől, így itt mindenképpen szükséges a valódi koncentráció eloszlás visszafejtése. Ehhez az korábban Menyhárd Miklós által kifejlesztett próbálgató módszer alkalmaztam [81]. A módszer lényege a következőként foglalható össze. Először egy próba valódi mélységi koncentráció eloszlást feltételezünk. Ezután ezt a próba eloszlást alávetjük egy adott vastagságú rétegenkénti eltávolításnak, ahol minden eltávolított rétegnél kiszámítjuk az új kilépő Auger elektron intenzitást. Az ionbombázást a bevezetőben (II. 3.) leírt TRIDYN kódú programmal modellezzük. Az Auger elektron intenzitásokat pedig a szimuláció által adott koncentráció eloszlásból számoljuk a fentebb említett elektron szabad úthosszak figyelembevételével. Az ionbombázás szimulációját mindaddig folytatjuk, míg megkapjuk a kívánt eltávolított rétegvastagságot. Az így kapott szimulált mélységi profilt aztán összehasonlítjuk a mért mélységi profillal. Az eljárás lényege, hogy a kiinduló próba koncentráció eloszlást addig módosítjuk, míg a belőle számolt eloszlás nem egyezik meg a mért mélységi koncentráció eloszlással. Összességében elmondható, hogy ez a módszer figyelembe veszi mind az ionbombázás indukált atomi keveredést és a véges elektron szabad úthosszból eredő koncentráció eloszlás torzítását is.

A módszert ellenőriztem a jól ismert kiinduló besugározatlan mintán mért AES mélységi profilon. Ahogy azt a dolgozat ionporlasztással foglalkozó fejezetében is láthattuk, a vizsgált rétegrendszer éles réteghatárokkal rendelkezik (lásd 22. b ábra). A korábbi TEM

felvételek alapján az eredeti réteghatár átmenetek szélessége 1.5 nm körüli, így ezek a határátmenetek lépcsőfüggvény szerűnek tekinthetők. Alkalmazva a fentebb leírt eljárást a 39. ábrán látható eredményeket kaptam.

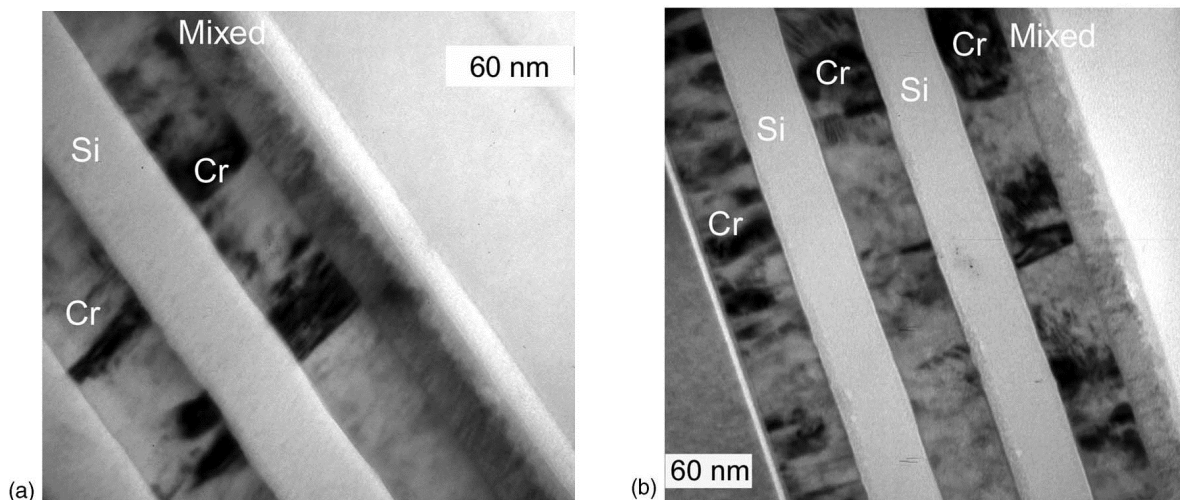


39. ábra: A mért és szimulált mélységi koncentráció eloszlások összehasonlítása

Az ábrán láthatjuk, hogy a mért és szimulált Si1/Cr1 réteghatár átmenet utolsó szakaszának profilja a besugározatlan minta esetében jól egyezik. Ebből következik, hogy a kezdeti, lépcsőszerűnek választott eloszlás (az egyszerűség kedvéért nincs feltüntetve az ábrán) megegyezik a minta igazi utolsó szakaszbeli koncentráció eloszlásával.

Láthattuk, hogy az összes mért AES mélységi profilon az összekevert szakasz dózistól függetlenül az éles harmadik szakasszal csatlakozik a tiszta Cr1 réteghez. Most már azt is látjuk, hogy a harmadik szakasz valójában egy lépcsőszerű átmenet. Ezt alátámasztandó a szimulációt a 410 ion/nm² iondózist kapott minta Si1/Cr1 réteghatár harmadik szakaszára is elvégeztem. A mért és szimulált koncentráció eloszlások ebben az esetben is jó egyezést mutattak, tehát az összekevert tartomány harmadik szakasza dózistól függetlenül valóban lépcsőszerű igazi koncentráció eloszlással rendelkezik. A 39. ábrán megfigyelhetjük még azt, hogy az összekevert tartomány középső szakaszán a mért és valódi koncentráció görbéje megegyezik. Ez azért van, mert itt a koncentráció valójában nem változik azon a 2 – 3 nm hosszon mely befolyásolná a mért Auger elektron intenzitást. Mivel a megfigyelt keveredési mechanizmus egyáltalán nem szokványos ezért érdemesnek tartottam a néhány besugárzott

minta szerkezetét megvizsgálni keresztmetszeti transzmissziós elektronmikroszkóppal (XTEM) is. Ennek eredményét a 40. (a, b) ábra mutatja be.



40. ábra: a) 205 és b) 410 ion/nm^2 Ga^+ dózist kapott minták XTEM keresztmetszeti képei

Mindkét esetben jól láthatóan a kevert tartományt és a tiszta Cr1 réteget elválasztó réteghatár éles igazolva az AES mélységi feltérképezés eredményeit.

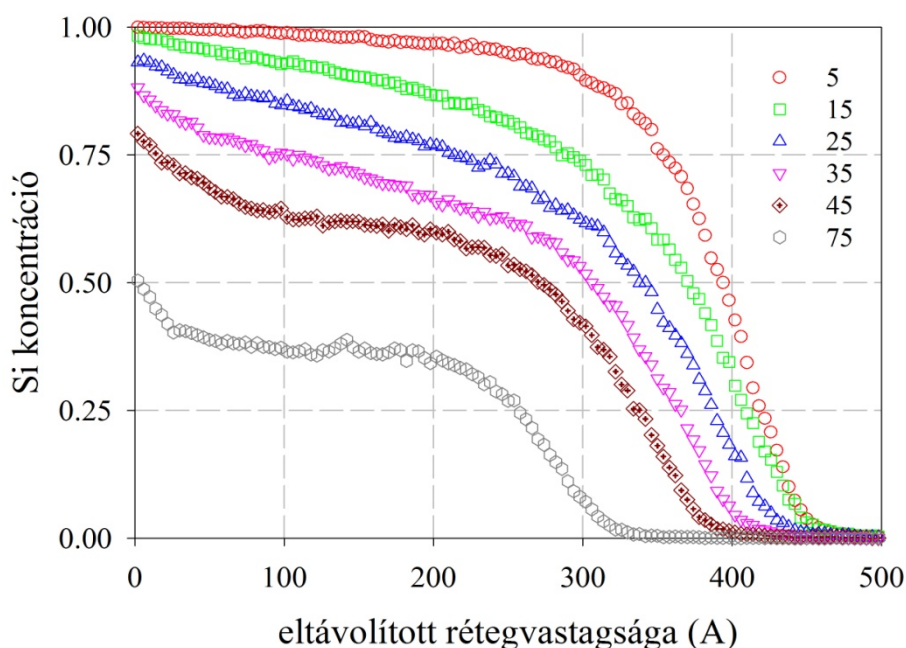
A továbbiakban megvizsgáltam leírható-e ez a szokatlan atomi keveredési mechanizmus a korábban már említett ballisztikus modellek alkalmazásával.

1. 5. SRIM és TRIDYN szimulációk alkalmazása

A Ga^+ ionok behatolását a SRIM [8] szimuláció segítségével modellezhetjük. A program segítségével számított átlagos behatolási mélységek 30 keV energiájú és 5° beesési szögre 11 ± 6 nm és 28 ± 10 nm voltak tiszta Si és Cr céltárgy esetében. A nagy behatolási mélység különbség miatt arra következtethetünk, hogy a mi esetünkben a Ga ionok behatolása nem egy átlagos Gauss típusú eloszlást követ, sokkal inkább egy két maximumot mutató eloszlást. Az egyik maximum nyilvánvalóan a Cr rétegben lesz. Csökkentve a Si réteg vastagságát (látszólagosan nagyobb dózist alkalmazva) a második maximum erőteljesen megnő. Ebből arra következtethetünk, hogy az energia tetemes része pont a réteghatár közelében nyelődik el, előidézve ezzel a nagymértékű atomi keveredést. Ebben az esetben tehát SRIM szimuláció jól magyarázza az általunk tapasztalt jelenséget. Ugyanakkor ez a féle szimuláció jól tudjuk nem ad semmilyen információt a végbemenő ionbombázás indukált ronsolódásról. Ezért ezt követően ismételten a dinamikus TRIM kódú szimulációhoz [24]

fordultam, mely elvileg képes figyelembe venni a céltárgyban végbemenő strukturális változásokat.

Elvégeztem a TRIDYN szimulációt a kísérletben alkalmazott összes iondózisra 21 – 810 ion/nm². A program beviteli felületén az alapparamétereket változatlanul hagytam, azaz a tömbi kötési energia minden anyagra 0 eV volt, a felületi kötési energiák pedig: Si 4.8 eV, Cr 4.2 eV és 2.8 eV Ga esetére. A Si vonatkozó vágási energia (lásd II. 3. 1./21. old.) 2.1 eV választottam. A szimuláció által számolt mélységi koncentráció eloszlásokat a 41. ábrán láthatjuk.



41. ábra: TRIDYN szimulációk eredményei 30 keV energiájú 5° beesési szög alatt érkező Ga⁺ ionbombázás esetén

Belátható, hogy a szimulációk jelzik az iondózis függő roncsolódást/atómi keveredést. Ugyanakkor a mi általunk tapasztalt különleges, szakaszokra bontható atómi keveredést nem írják le. Ebből következik, hogy az egyszerű ballisztikus modellek ebben az esetben nem működnek.

1. 6. A kapott eredmények kvalitatív értékelése

Ahogy azt láthattuk a 30 keV energiájú Ga⁺ ionbombázás által indukált atómi keveredés az eredeti réteghatár átmenet helyén létrejövő különböző meredekségű szakaszokból áll. Itt a legnagyobb atómi keveredésre az iondózis függő középső szakasz utal. Megmutattam, hogy a középső igen erősen összekevert szakaszt mind a szabad felület, mind pedig a tiszta Cr1 réteg felől az iondózistól független szakaszok választják el. Ezek közül a

Cr1 réteget határoló nagyon élesnek bizonyult. A fentiek szerint a bekövetkezett atomi keveredés vizsgálatánál elegendő, ha csak a középső szakaszra összpontosítunk. Kivéve a nagyon kis iondózisú besugárzást a középső tartomány jól elkülöníthető lineáris szakaszként. Ezt a szakaszt a szélességével és a meredekségével tudjuk jól jellemezni. Ezeket a paramétereket foglaltam össze a 4. táblázatban.

4. táblázat

Besugárzott dózis, ion/nm ²	A kevert tartomány középső szakaszának vastagsága, nm	A középső szakasz meredeksége
51	2.5	-0.66
205	15.2	-0.17
410	24.2	-0.055
820	30	-0.018

Az iondózis növelésével a középső szakasz meredeksége csökken, ami azt jelenti, hogy egyre homogénebb kevert réteget kapunk. Tehát ezt a folyamatot tekinthetjük úgy is, mint a Si1 rétegben a Cr atomok réteghatáron keresztüli transzportjának köszönhetően növekvő kevert réteget kialakulása.

Tulajdonképpen egy új folyamat megy itt végbe. Mivel a Ga⁺ ionok a besugárzás közben porlasztják is a Si1 réteget ezért elegendően nagy dózisonál a végeredmény egy teljesen összekevert réteg lesz a tiszta Cr hordozón, melyet attól éles réteghatár választ el. Az iondózis további változtatásával különböző összetételű kevert réteget hozhatunk így létre a tiszta Cr hordozón.

Nagyon szokatlannak mondható a minden esetben éles réteghatár létrejötte a két réteg között. Megpróbálhatjuk ezt magyarázni egy nagyon aszimmetrikus jellegű atomi keveredéssel. Abban az esetben fordulhat ez elő, ha a Cr atomok sokkal könnyebben bele tudnak menni a Si rétegbe, mint a Si atomok a Cr rétegbe. A valós AES mélységi profilokból könnyen meghatározható a Si rétegbe átmenő Cr atomok száma. Ebből kiszámoltam, hogy 2.6 Cr atom megy bele a Si rétegbe egy Ga⁺ ion hatására.

Végezetül felmerül a kérdés, hogy ésszerű-e feltételezni aszimmetrikus atomi keveredést ezen az energián? Én nem találkoztam ilyen jellegű munkával az irodalomban. Korábban mi vizsgáltuk ezt a folyamatot Pt/Ti [53] és Co/Ti [23] rétegpárokon, de kis energiájú AES mélységi profilírozáshoz használt 1 keV Ar⁺ ionok besugárzásával. A Pt/Ti rétegpárok esetében mély Pt behatolást mértünk a Ti rétegbe; megfordítva a rétegsorrendet ez nem volt mérhető. Abban a munkában az elvégzett MD szimulációk eredményeit figyelembe

véve a nagy atomtömeg különbséggel próbáltuk magyarázni ezt a fajta aszimmetrikus viselkedést. Aztán megvizsgáltuk ugyanezt a jelenséget, ugyanilyen bombázási körülmények között egy Co/Ti közeli atomtömegű párosításon. Ebben az esetben is megfigyeltük az aszimmetrikus atomi keveredést, itt már végképp nem tudtunk egyértelmű magyarázatot találni a folyamat hajtóerejére.

Újabb vizsgálataink arra utalnak a furcsa éles határátmenet kialakulása a ballisztikus keveredést követő relaxáció eredménye [s9]. Ahogy azt többször hangsúlyoztuk a ballisztikus keveredés az anyagot egy erősen nem – egyensúlyi állapotba kényszeríti. Ebben az állapotban már alacsony hőmérsékleteken is történhetnek relaxációs átalakulások különösen akkor, ha figyelembe vesszük, hogy az éles határfelület kialakításához néhány nm-es atomi transzportra van csak szükség, azaz néhány atomi ugrás elégséges az éles határfelület kialakításához.

2. A 20 keV energiájú Ga^+ , Ar^+ és CF_4^+ ionok hatása

A TEM mintakészítés ionbombázásos mintavékonyítást alkalmaz. Ennek igen sok fajtája van (pl. a III. 2. 3. 3. pontban leírt); ezek közül a közepes energiájú többek között Ga^+ ionokat használó módszereket vizsgáltam. Azt próbáltam megtudni milyen hatással van egy réteges szerkezetre az általánosan alkalmazott 20 keV energiájú Ga^+ ionbombázás. Pontosabban azt kívántam megvizsgálni, hogy a Ga^+ ionbombázás okozta károsodás, hogy viszonyul az Ar^+ , vagy a CF_4^+ (szén-tetrafluorid) hatásához. Ez utóbbi a SIMS technikában használatos, mert nagyon jó mélységi felbontást eredményez [87]. Az előző munkákból azt is tapasztaltam, hogy az ionbombázás roncsoló hatását közvetve befolyásolja az ionbeesési szög. Kísérleti lehetőségeimet kihasználva sikerült minden ionfajtára különböző ionbeesési szög mellett besugárzást végezni.

Mivel ezeket az ionbombázási feltételeket általában valamilyen megmunkálási vagy hámozásos vizsgálati módszerekben alkalmazzák ezért előnyösebbnek tartottam az előidézett roncsolási folyamatot az eltávolított anyagmennyiség (rétegvastagság) függvényében vizsgálni. Feltételezhetően az egyes ionfajták roncsolási mechanizmusa eltér egymástól [82]. Abban szinte biztosak lehetünk, hogy bármelyik ionfajta behatolása okozhat elválásokat az útjába kerülő réteghatár átmeneten. Ennek a vizsgálatára számomra a legkézenfekvőbb közös paraméter az atomi keveredés miatti réteghatár átmenet kiszélesedés volt.

3.1. A kísérletek előkészítése

Ebben a kísérletsorozatban is a IV. 3. 3. fejezetből már jól ismert Si1(42.3 nm)/Cr1(44.2 nm)/Si2(40.4 nm)/Cr2(44.2 nm)/Si3(40.4 nm)/Cr3(46.1 nm)/[Si hordozó] kezdeti szerkezetű vékonyréteg rendszerű mintákat sugároztunk be.

Minden ionfajta esetében eltérő ionsugár beesési szöget alkalmaztam. Technikai okok miatt azonban nem lehetett beállítani ugyanazokat az ionsugár beesési szögeket minden ionfajtára. Így a 20 keV energiájú besugárzások körülményeire a következőket tartottam a legjobb kombinációnak a 3 különböző ionfajta esetében:

1. Ga^+ – 5° és 65° ionsugár beesés (minden esetben a felület normálisától számítva)
2. Ar^+ és CF_4^+ – 75° ionsugár beesés

Az alkalmazott ionsugár beesési szögek különbözősége a teljesen más működési elvű gáz és folyadék fém ionágyú alkalmazási helyéből ered. A két ionágyú két teljesen független és funkciójukban is különböző kísérleti berendezés része. A Ga^+ fókuszált sugarú ionforrás

(FIB) az intézetünkben megtalálható LEO 1540XB pásztázó elektronmikroszkóp kiegészítője. Ezt általában vágásra, lyukfúrásra és implantálásra alkalmazzák. Míg a 20 keV energiájú gázforrású (Ar, CF₄) ionágyú a Barna Árpád és a Technoorg Linda Kft. új, közös fejlesztése [83]. Ez a berendezés általánosan transzmissziós elektronmikroszkópos (TEM) minták vékonyításának [54] céljából készült. Ennek a technikának megfelelően kizárólag nagyon sűrű ionsugár beesések beállítására tették alkalmassá, ezért a legkisebb beállítható ionbeesési szög 75° volt (a felület normálisától számítva).

Az ionsugárzás roncsoló hatását az általa okozott atomi keveredés mértékével jellemeztem. Az ionbombázás indukált réteghatár kiszélesedést és az elporlasztott réteg vastagságát AES mélységi profilokból határoztam meg. Az AES mélységi feltérképezés ugyanazzal a berendezéssel és ionbombázási körülményekkel zajlott, melyet a dolgozat V. 1. 1. fejezetében leírtam. Ebben az esetben csak az ionsugár beesési szöge volt más, azaz 76° a felület normálisához képest.

A különböző ionbesugárzást kapott mintákon mért AES mélységi profilok kiértékelését, azaz a porlasztási idő – mélység transzformációt az általam kifejlesztett és a dolgozat IV. 3. 2. fejezetében összefoglalt algoritmussal számoltam.

Mivel az lesz a feladatunk, hogy a réteghatár átmenetek kiszélesedését pontosan megmérjük, ezért a munkámnak ebben a részében, Kirchhoff és társai által kifejlesztett LOGIT nevű programot használtam, ami egy logisztikus függvényt illeszt a megadott mélységi profilra. Ezt a függvényt gyakran alkalmazzák fizikai és biológiai folyamatok leírására [84]. Esetünkben például A és B atom helycseréjének valószínűségéből indul ki a függvény leírása, mégpedig arányosan a hajlamossági paraméterrel, k -val. Természetesen ennek a valószínűségnek csökkennie kell a határátmenettől eltávolodva bármelyik irányba. Ezeknek a feltételeknek felel meg, ha az A atomok részaránya f_a a (33) alakú függvény szerint változik az eltávolodás X mértékével.

$$f_a = \frac{1}{(1+e^{-kX})}, \quad (33)$$

Mivel k -t megadhatjuk $1/X$ egységekben, ezért helyettesíthetjük $1/D$ –vel. Ebben az esetben D fogja jellemezni a réteghatár átmenetünk szélességét. Ennek alapján kiválaszhattunk egy az f_a részarányral arányos Y illesztési függvényt, mely jellemző lesz az általunk mért koncentráció eloszlásra úgy, hogy közben egy paraméterrel jellemzi a réteghatár átmenet szélességét is. Ezt a következő alakban írhatjuk fel [85]:

$$Y = \frac{C_A}{1+e^{(X-X_0)D}}, \quad (34)$$

ahol C_A az A atomok koncentrációja. Belátható, hogy $X=X_0$ pozícióban a függvény értéke $C_A/2$, vagyis X_0 a réteghatár közepe lesz. Figyelembe kell vennünk azonban azt is, hogy lehetnek olyan esetek, amikor a réteghatár szélességére jellemző paraméter D is függhet a pozíciótól, azaz X_0 –hoz képest aszimmetrikus réteghatárról van szó. Ilyenkor D –t is egy logisztikus függvénnyel tudjuk leírni, így:

$$D = \frac{2D_0}{1+e^{Q(X-X_0)}} , \quad (35)$$

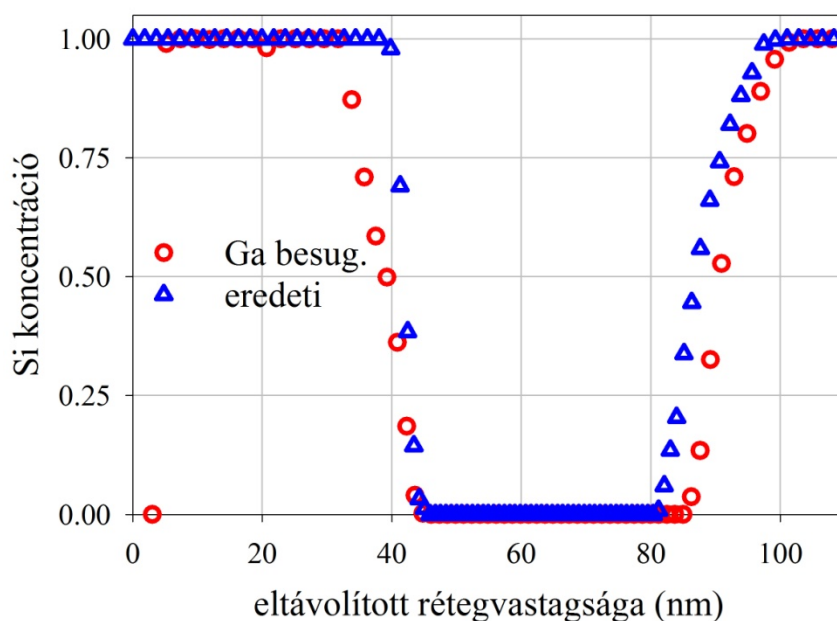
ahol, Q paraméter jellemzi a szimmetrikustól való eltérést, azaz minél kisebb Q értéke, annál közelebb kerül D a D_0 szimmetrikus átmenet szélességéhez. A program az Y függvényt a legkisebb négyzetek átlaga módszerrel illeszti a beadott mélységi profilra. A program béta verzióját használtuk, amit a fejlesztő adta oda kipróbálásra [86].

3.2. A mért AES mélységi profilokból származó eredmények

A 42. ábra szemlélteti a 20 keV energiájú Ga^+ ionok által okozott réteghatár átmenet kiszélesedést 5° ionsugár beesési szög esetén. Egy 15 nm felületi réteg eltávolítás után már látható az ionok által okozott réteghatár átmenet kiszélesedés az eredeti besugározatlan konstrukcióhoz képest. Ahogyan az előző kísérletekben (30 keV) a szabad felülettől számított második Cr1/Si2 réteghatár átmenet itt is sértetlen marad. Ezért a 20 keV energiájú ionbombázás roncsoló hatását az első rétegátmenet kiszélesedésével fogom mérni. Ezt az illesztett logisztikus függvény D illesztési paramétere fogja megadni.

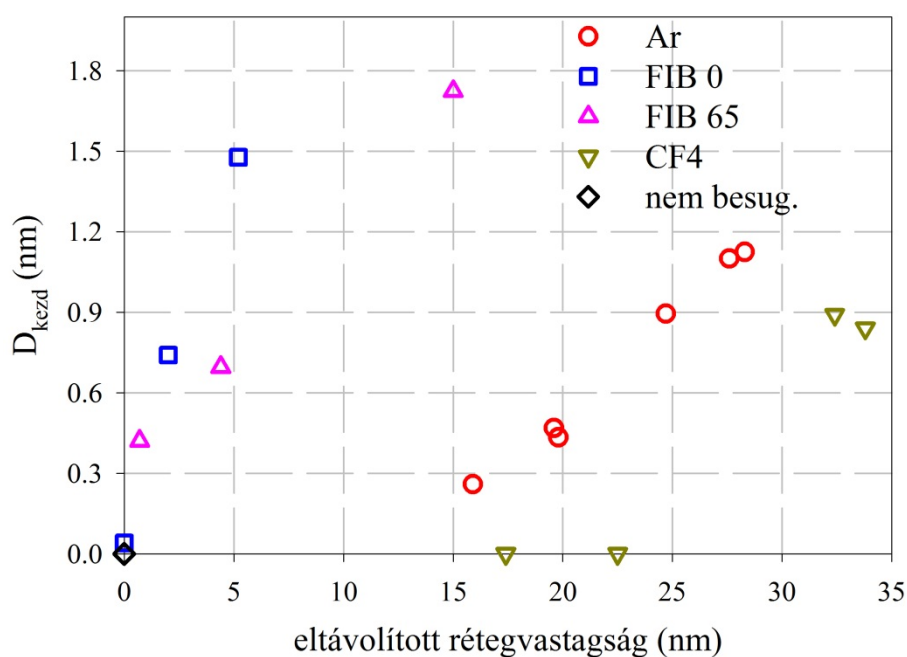
Ha minél pontosabban akarjuk meghatározni a besugárzás által okozott réteghatár kiszélesedést, akkor tudnunk kell, hogy a teljes mért réteghatár kiszélesedés $D_{\text{mért}}$ esetünkben (azaz a felületi durvaság miatti kiszélesedést elhanyagolva) két független összetevő szuperpozíciója. Az egyik az AES mélységi profilozás előtti kezdeti réteghatár durvaság $D_{\text{kezd.}}$, vagyis a 20 keV energiájú besugárzás hatása. A másik az AES mélységi feltérképezés okozta kiszélesedés, D_{AES} . A hatások négyzetesen adódnak össze, így:

$$D_{\text{mért}} = \sqrt{(D_{\text{kezd.}}^2 + D_{\text{AES}}^2)} .$$



42. ábra: A 20 keV energiájú 65° alatt érkező Ga^+ ionok hatása a Si1/Cr1 réteghatár átmenetre

Az így meghatározott $D_{\text{kezd.}}$ értékeket az Ar^+ és CF_4^+ 75° valamint a Ga^+ 5° és 65° besugárzások hatására a 43. ábrán láthatjuk összefoglalva az egyes besugárzásoknál eltávolított rétegvastagság függésében.



43. ábra: Az Ar^+ és CF_4^+ 75° valamint a Ga^+ 5° és 65° 20 keV energiájú ionbesugárzás által indukált réteghatár kiszélesedés értékei

3.3. Az eredmények értelmezése

A Vékonyréteg osztály ahol dolgozom, főleg elektronmikroszkópos vizsgálatokkal foglalkozik, amihez nagyon vékony (<100 nm) mintát kell készíteni. A mintakészítés ionbombázásos vékonyítással történik. Ebben a környezetben a természetes kérdés az volt, hogy mi történik a mintával egy vékonyítási folyamat során. Ezt a kérdést úgy próbáltam megválaszolni, hogy vizsgáltam egy a megmunkált felülettől távoli határfelület kiszélesedését a megmunkálás során. Azaz ebben az esetben az ionbombázás roncsoló hatásának jellemzésére az indukált réteghatár kiszélesedés mértékét választottam az eltávolított rétegvastagság függvényében.

Az eddigiek alapján furcsának tűnhet, hogy miért vizsgáltuk a csaknem merőleges beesésű Ga^+ ion hatását, ugyanis azt várjuk, hogy a roncsolási hatása nagy lesz. A Ga^+ -ot használó ionvékonyításos irodalomban azonban többen azt állítják, hogy a Ga^+ ion roncsolási hatása szögfüggetlen; ezt az állítást McCaffrey és társai fejtik ki részletesen [103]. Ennek az állításnak a helyességét is meg kívántam vizsgálni.

A IV. 3.2. fejezetnek megfelelő kiértékelést használtam most is. Eszerint az roncsolatlan, mélyebben fekvő Si rétegen határoztam meg a relatív porlasztási hozamot. Felmerül a kérdés, hogy vajon ez az érték a felületi Si rétegre, amit az ionbesugárzás megváltoztatott alkalmazható-e? Ehhez megmértük a felső Si réteg vastagságát ellipszométerrel és TEM –el [89] és azt találtuk, hogy a meghatározott relatív porlasztási érték jó közelítés.

A 43. összesítő ábra mutatja az egyes ionfajták által okozott réteghatár kiszélesedéseket az eltávolított rétegvastagság függvényében. Láthatjuk, hogy ionfajtatól és beesési szögtől függetlenül a Si1/Cr1 réteghatár átmenet kiszélesedése mindig növekszik az eltávolított anyagmennyiség növelésével. Ennek kvalitatív magyarázata egyszerű. Az történik, hogy egyre nagyobb rétegvastagság eltávolításával egyre közelebb kerülünk a réteghatár átmenethez, így egyre nagyobb az otthagyt energia. A Ga^+ ionok esetében ugyanolyan rétegvastagság eltávolítás hatására a kisebb beesési szög mindig nagyobb réteghatár kiszélesedést eredményez, mint a nagy beesési szögön érkező ionok.

A gázionok beesési szöge technikai okok miatt sajnos 10° – al nagyobb, mint amit a Ga^+ ionoknál alkalmaztunk. Ugyanakkor tudjuk, hogy ebben a szögtartományban a besugárzást jellemző fizikai paraméterek (porlasztási hozam, behatolási mélység, stb.) gyengén változnak. Tehát nem várható, hogy ilyen kis beesési szögműködés nagy különbségeket eredményezzen a réteghatár kiszélesedésben. Ezért jogosnak tartottam összehasonlítani a Ga^+ , Ar^+ és CF_4^+ hatását.

A 43. ábrán láthatjuk, hogy a réteghatár kiszélesedés nagymértékben függ az ionok fajtájától. A kiszélesedés Ga^+ bombázás esetén a legnagyobb és CF_4^+ bombázás mellett a legkisebb. Eddigi tudásunk alapján ez megfelel a várakozásoknak, mivel régebből ismert, hogy a Ga^+ ionbombázás számottevő roncsolást okoz [90-98, s7]. Másrésről viszont a CF_4^+ bombázás a felületi morfológia fejlődés és a mélységi felbontás növelése érdekében lett bevezetve egyes kísérleti technikáknál [99-101].

Az ionfajták különböző mértékű hatása közötti különbség okának kvalitatív értékelése nehéz. Megvizsgálhatjuk esetleg, hogy a különbözőség függ-e valamilyen módon az ionok átlagos behatolási mélységétől és annak kiterjedésétől. Az 5. táblázatban láthatjuk a behatolási mélységek alakulását, melyet az adott paraméterekre SRIM szimulációval számoltam ki Ga^+ és Ar^+ ionok esetében.

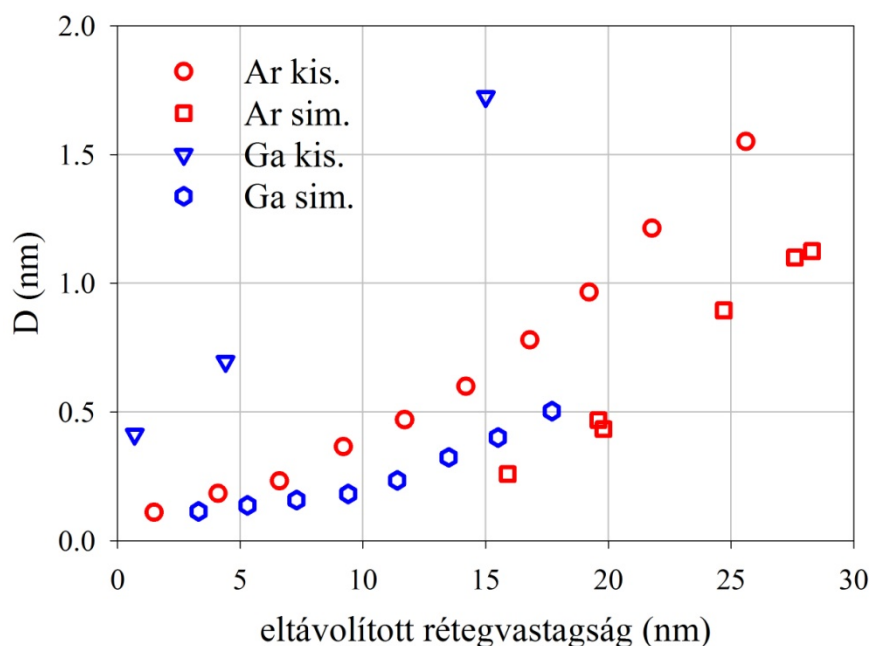
5. táblázat

A bombázó ion fajtája és beesési szöge	R_p (nm)
$\text{Ga } 5^\circ$	21 ± 7.6
$\text{Ga } 65^\circ$	9.6 ± 7.8
$\text{Ar } 75^\circ$	10.7 ± 7

Láthatjuk, hogy a hasonló ionbeesési szögek mellett az Ar^+ ionok behatolása nagyobb, mint Ga^+ ionokra. Így, ha az ionbombázás indukált atomi keveredés a behatolási mélységgel skálázódik, akkor az Ar^+ ionok által okozott kiszélesedés várhatóan nagyobb mértékű lenne. Ezzel teljesen ellenkezőt mutat a mérésünk. Ezért nem jelenthetjük ki, hogy az ionok behatolási mélysége közvetlenül befolyásolja az ionindukált atomi keveredés mértékét. Ugyanakkor azonos ionok, de különböző ionbeesési szögek esetén egyszerűbb összefüggést mutatnak a kísérleteink.

Mivel tudjuk, hogy a SRIM szimuláció nem veszi figyelembe a céltárgy roncsolódásának felhalmozódását, ezért ellenőriztem milyen előrejelzéseket ad a TRIDYN szimuláció alapbeállítások mellett. Mivel ez a szimuláció megadja az elemek valódi mélységbeli eloszlását ezért itt is, alkalmazva a LOGIT illesztő programot meg tudtam határozni a $D_{\text{kezd.}}$ értékeit meghatározott rétegvastagságok eltávolítása után $\text{Ar}^+ 75^\circ$ és

Ga 65° ionbombázás hatására. A szimuláció és a kísérletek alapján meghatározott réteghatár kiszélesedés értékeit mutatja a 44. ábra.



44. ábra: A nagyszögű 20 keV energiájú ionbesugárzások hatásának összehasonlítása: Ar^+ , valamint Ga^+ 65°

Először is megállapíthatjuk, hogy jó egyezésben a SRIM szimulációból levont következtetésekkel az Ar^+ bombázás nagyobb réteghatár kiszélesedést eredményez, mint a Ga^+ bombázás (közel egyforma beesési szög mellett). Másik oldalról ez szomorú, mert ellentmondanak a kísérleti eredményeknek. Az ábrán az is látszik, hogy Ar^+ bombázás esetén a kísérleti és szimulációval számolt eredmények változásának trendje hasonló. Meg kell jegyeznem, a kiszélesedés mért és szimulált abszolút értékei Ar esetben közelebb hozhatóak egymáshoz a szimulációban a felületi kötési energiát enyhén megváltoztatva; ez a változtatás az eltávolított rétegvastagságot befolyásolja.

A fentebb megállapítottak alapján elmondhatom, hogy Ar^+ ionbombázás esetében egyszerűen a behatolási mélység ismerete nem használható fel az ionbombázás indukált réteghatár kiszélesedés becslésére. Ugyanakkor a Ga^+ ionbombázás hatását sem a behatolási mélységgel sem pedig a TRIDYN szimulációval nem tudtam jellemezni.

Ga^+ bombázás esetén az ionbeesési szög szerepét viszont magyarázhatjuk a behatolási mélységek és a porlasztási hozamok különbségével. Itt ugyanis 5° beesési szög

esetén a réteghatár átmenet kiszélesedés nagyobb, mint 65° ionbeesés mellett; a porlasztási hozam viszont pontosan fordítva viselkedik. Ezekből a különbségekből arra következtethetünk, hogy az anyageltávolításért felelős energiaelnyelődés 5° ionbeesés esetén nagyobb, mint 65° beesési szög mellett. Ebből arra is következtethetünk, hogy FIB ionfűrésznél a roncsolódás mértéke a felületen más lesz, mint a lyuk falán megegyezően Wang és társai munkájával [102]. Ez az eredmény ugyanakkor azt mutatja, hogy McCaffrey [103] következtetése hibás.

Az ismertetett eredmények megjelenése óta nagyon sok történt a FIB-es mintavékonyítás területén. Megállapításainkkal teljes összhangban, de sajnos attól függetlenül, elfogadott lett, hogy a TEM-es mintakialakításhoz a Ga^+ energiáját csökkenteni kell; manapság már vannak készülékek ahol 500 eV energiájú ionokat használnak erre a célra. Ezeknél az energiáknál nem tudjuk, milyen a szögfüggés hatása, de sajnos nekünk ilyen berendezésekhez még nincs hozzáférésünk és nem tudjuk azt ellenőrizni.

A CF_4^+ bombázásról nem beszéltem a szimulációk kapcsán, mert esetében a bombázási folyamat bonyolultsága miatt nem tudtam szimulációt végezni. Fontos megjegyezni, hogy a kísérleteimben CF_4^+ bombázás alkalmazásával kaptam a legkisebb atomi keveredést, mely nem mond ellent a szakirodalomból szerzett tapasztalatomnak [99-101].

Összefoglalásként meg kell jegyeznem néhány dolgot a szimulációkkal kapcsolatban. A dolgozat az ionbombázás indukált változások, relatív porlasztási hozamok, a határfelület kiszélesedése, az ion bombázás indukált keveredés mértéke kísérleti vizsgálatával foglalkozott. Mint ezt említettem ezek az adatok igen sok gyakorlati esetben szükségesek. Minden esetben megvizsgáltam, hogy a meghatározott mennyiségek, kiszámíthatók-e a rendelkezésre álló bináris kölcsönhatást feltételező Monte Carlo szimulációkkal? (Ahogy említettem az MD szimuláció e változások meghatározására jelenleg még nem alkalmas). Ezt azért tettem, mert a fent nevezett mennyiségek megmérése csak hosszú idejű, drága kísérletekkel lehetséges. Mindenképpen indokolt lenne tehát a sokkal gyorsabb és olcsóbb számításokat alkalmazni.

A szimulációk az elsődleges adatot, a bombázó ionok behatolását általában jól megadják. Elég jók az egyezések a porlasztási hozamoknál a merőleges (0° a mi szokásos koordináta rendszerünkben) beesésű ionbombázásnál [9]. Azonban sajnálatos módon azt tapasztaltam, hogy az általam vizsgált kísérleti körülmények között (súrlódó ionbeesési szög)

az esetek többségében a szimulációk nem alkalmazhatók. Ezt már régen felismerték; ezért alkotta meg Eckstein az erre az estre is használható képletét [37], ami viszont esetünkben szintén rossz eredményeket adott. A szimulációk nem jó viselkedését nem tudom megmagyarázni. Útalok azonban egy-két lehetőségre.

Az nyilvánvaló, hogy esetemben, súrlódó beesésű ionbombázás esetén, a hibahely keltés a felület közelében van és így a kikerülhetetlen relaxációk, amibe most már a szabad felület is beleszól, nagyobb súlyúak és nehezebben leírhatóak. Az is biztos, hogy a porlasztási hozam igen erősen változik $75-80^\circ$ felett, azaz a relatív porlasztási hozam kiszámításánál két erősen változó függvény hányadosát kell képeznünk, ami természetesen nagy hibát is okozhat. A közepes energiájú gallium ionokkal végzett keveredési kísérleteknél éles határfelület jött létre. Ilyen képződményt az általam használt szimulációk nem tudnak létrehozni. Ebben az esetben viszont arról van szó, hogy a térfogatban keletkezett kristályhibák szerepe válik fontossá. Egy nem régen közölt cikkünkben ezt a jelenséget szegregációs folyamatokkal próbáljuk magyarázni [s9].

Összegzésül azt mondhatom, hogy a folyamat bonyolultsága miatt úgy tűnik, hogy az adott paraméterek megmérésére szükség van, azok számolással nem érhetők el.

1. Kifejlesztettem egy algoritmust, amellyel az Auger elektron spektroszkópiai mélységi feltérképezéssel kapott eredményekből meg lehet határozni az anyagok relatív porlasztási hozamát. A kifejlesztett algoritmus alkalmazásával meghatároztam C/Ni [s1, s4], Si/Cr [s2, s3], Au/Si [s4], C/Ta [s4-s6] relatív porlasztási hozamokat sűrűlódó ionsugár beesési szögtartományban, amiket összehasonlítottam az általánosan ismert TRIM.SP kódú szimuláció által számolt értékekkel. Ebből megállapítottam, hogy az alkalmazott kísérleti paraméterek mellett ez a szimuláció nem alkalmazható a porlasztási hozamok előrejelzésére. Következésképpen, a munkában alkalmazott kísérleti körülményekhez hasonló feltételek mellett javasolt a TRIM.SP szimuláció legalább szűrőpróba szerű kísérleti ellenőrzése.
2. A 30 keV energiájú 5° beesési szögű fókuszált Ga⁺ ionbombázás hatását az iondózis függvényében vizsgáltam 25 – 820 ion/nm² tartományban Si/Cr réteghatár átmenetre. Azt találtam, hogy a besugárzás egy erősen kevert, jól elkülöníthető réteget eredményez az első (felülethez legközelebbi) Si/Cr rétegátmenet helyén. A kevert réteg dózistól független éles határátmenettel csatlakozik a tiszta Cr réteghez. Tehát egy új típusú nem szokványos hibafüggvény szerű réteg kialakulást figyeltem meg. A kialakult kevert réteg és a tiszta Cr réteg közötti éles határátment létezését XTEM vizsgálatokkal is igazoltam. Az ismert ballisztikus modelleken alapuló dinamikus TRIDYN szimuláció nem írja le a tapasztalt atomi keveredési mechanizmust [s7].
3. Meghatároztam a különböző ionfajták által okozott, a felülettől viszonylag távoli, réteghatár átmenet kiszélesedést a TEM minta kialakításának megfelelő ionbombázási paraméterek mellett, az eltávolított rétegvastagság függvényében. Megállapítottam, hogy a kevert réteg kiszélesedése Ga⁺ ionok esetében volt a legnagyobb és CF₄⁺ ionok besugárzása esetében a legkisebb. A Ga⁺ ionbesugárzás 5° beesési szög mellett nagyobb kevert réteg vastagságot eredményezett, mint a 65° beesési szög alatt érkező ionbesugárzás. A TRIDYN szimulációval az Ar⁺ ionbombázás hatásnak jellegét sikerült leírni, míg a Ga⁺ ionbombázás hatását teljesen rosszul írta le a modell [s8].

VII. KÖSZÖNETNYÍLVÁNÍTÁS

Elsősorban *Dr. Menyhárd Miklósnak*, témavezetőmnek tartozom köszönettel, aki időt és energiát nem sajnálva segítette munkámat az elmúlt évek alatt. Nemcsak szakmailag, de emberileg is sokat tanultam tőle.

Köszönet illeti közvetlen munkatársaimat *Dr. Gergely Györgyöt*, *Dr. Sulyok Attilát*, *Gurbán Sándort*, hogy elméleti és gyakorlati tanácsaikkal segítették beilleszkedésemet a felületfizikai csoportba.

Külön köszönettel tartozom *Dr. Pécz Bélának* és *Dr. Lábár Jánosnak*, hogy határon túli egyetemi tanulmányaim befejezése után szeretettel fogadtak az MTA Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Kutatóintézetben (MTA MFA). Szintén köszönet illeti meg az MTA MFA egykori és jelenlegi igazgatóját *Dr. Gyulai József* és *Dr. Bársony István* professzor urakat a munkalehetőség biztosításáért és határtalan türelmükért.

Köszönettel tartozom azon kollégáimnak, akik munkájukkal közvetlenül segítették a dolgozatban összefoglalt eredmények elérését, úgymint *Dr. Barna Árpádnak*, *Dr. Sáfrán Györgynek*, *Dr. Tóth Attilának* és *Dr. Tóth Lajosnak*.

Végül, de nem utolsó sorban nagy köszönet jár szüleimnek a mindennemű fáradhatatlan támogatásért.

Saját publikációk

- [s1] A. Barna, M. Menyhard, **L. Kotis**, Gy.J. Kovacs, G. Radnoczi, A. Zalar and P. Panjan: *Unexpectedly high sputtering yield of carbon at grazing angle of incidence ion bombardment*, Journal of Applied Physics 98, p. 24901, 2005
- [s2] **L. Kotis**, M. Menyhard, L. Toth, A. Zalar, P. Panjan: *Determination of relative sputtering yield of Cr/Si*, Vacuum 82, p. 178, 2008
- [s3] **L. Kotis**, M. Menyhard, A. Zalar, P. Panjan: Angular dependence of relative sputtering yield of chromium to silicon, 11th Joint Vacuum Conference, poster session ref. P2, Prague, 2006
- [s4] **L. Kotis**, M. Menyhard, A. Zalar: Relative sputtering yield determination by means of Auger electron spectroscopy depth profiling, 12th Joint Vacuum Conference, 10th European Vacuum Conference, 7th Annual Meeting of the German Vacuum Soc., poster session ref. P31, Balatonalmádi, Hungary, 2008
- [s5] **L. Kotis**, M. Menyhard, A. Sulyok, G. Sáfrán, A. Zalar, P. Panjan: *Determination of the relative sputtering yield of carbon to tantalum by means of Auger electron spectroscopy depth profiling*, Surface and Interface Analysis 41, pp. 799–803, 2009
- [s6] L. Zommer, A. Jablonski, **L. Kotis**, Gy. Safran, M. Menyhárd: *Simulation and measurement of AES depth profile; a case study for C/Ta/C system*, Surface Science 604, pp. 633–640, 2010
- [s7] A. Barna, **L. Kotis**, J. L. Labar, Z. Osvath, A. L. Toth, and M. Menyhard, A. Zalar and P. Panjan: *Ion beam mixing by focused ion beam*, Journal of Applied Physics 102, p. 053513, 2007
- [s8] A. Barna, S. Gurban, **L. Kotis**, A.L. Toth, M. Menyhard: *Ion mixing at 20 keV: A comparison of the effects of Ga⁺, Ar⁺ and CF₄ + ion irradiation*, Ultramicroscopy 109, pp. 129–132, 2008
- [s9] A. Barna, **L. Kotis**, J. Labar, A. Sulyok, A. L. Toth, M. Menyhard and Peter Panjan: Growing imbedded Ni₃C-rich layer with sharp interfaces by means of ion beam mixing of C/Ni layers, J. Phys. D: Appl. Phys. 44, p. 125405, 2011

- [1] P.C. Zalm, L.J. Beckers: Ion-induced secondary electron emission from copper and zinc, *Surface Science* 152-153, Part 1, pp. 135-141, 1985
- [2] S. Y. Lai, A. Brown, J. C. Vickerman, D. Briggs: The relationship between electron and ion induced secondary electron imaging: A review with new experimental observations, *Surface and Interface Analysis* 8, pp. 93-111, 1986
- [3] Л. Пранявичюс и Ю. Дудонис: Модификация свойств твердых тел ионными пучками, p. 10, Mokslas Press, Vilnius, 1980
- [4] M. Nastasi, J. K. Hirvonen, and J. W. Mayer: *Ion-Solid Interactions: Fundamentals and Applications*, Cambridge University Press, Cambridge, 1996
- [5] X.-Y. Liu, M.S. Daw, J.D. Kress, D.E. Hanson, V. Arunachalam, D.G. Coronell, C.L.Liu, A.F. Voter: Ion solid surface interactions in ionized copper physical vapor deposition, *Solid Films* 422, pp. 141–149, 2002
- [6] Vladimir J.T rava-Airoldi, Evaldo J.Corat, Lu'cia V.Santos, Alessandra V.Diniz, Joa'õ R.Mor, Ne'lia F.Leite: Very adherent CVD diamond film on modified molybdenum surface, *Diamond and Related Materials* 11, pp. 532–535, 2002
- [7] W. Eckstein, C. Garcia-Rosales, J. Roth, J. László: Threshold Energy for Sputtering and Its Dependence on Angle of Incidence, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 83, pp. 95-109, 1993
- [8] James F. Ziegler: <http://www.srim.org>
- [9] R. Behrisch, W. Eckstein: *Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*, Springer-Verlag, Berlin, 2007
- [10] Giber J., Josepovits K., Gyulai J., Bíró L.P.: *Diffúzió és ionimplantáció szilárdtestekben*, Műegyetem Kiadó, 1997
- [11] P.Sigmund: A Mechanism of Surface Micro-Roughening by Ion Bombardment, *Journal of Materials Science* 8, p. 1545, 1973
- [12] E. Chason and T. M. Mayer: Low energy ion bombardment induced roughening and smoothing of SiO₂ surfaces, *Applied Physics Letters* 62, p. 363, 1993
- [13] Barna A.: Topographic kinetics and practice of low angle ion beam thinning. In Proc. Fall Meeting MRS, Boston, Workshop on Specimen Preparation for Transmission Electron Microscopy of Materials-III, MRS Conf. Ser. 254, pp. 3-22, 1992
- [14] G. Carter, V. Vishnyakov: Ne⁺ and Ar⁺ ion bombardment-induced topography on Si, *Surface and Interface Analysis* 23, pp. 514-520, 1995

- [15] Z. Csahok, Z. Farkas, M. Menyhard, G. Gergely, Cs.S. Daroczi: Surface morphology development during ion sputtering: roughening or smoothing?, *Surface Science* 364, pp. L600-L604, 1996
- [16] Jing Zhou and Ming Lu: Mechanism of Fe impurity motivated ion-nanopatterning of Si (100) surfaces, *Physical Review B* 82, p. 125404, 2010
- [17] M. A. Makeev, A. L. Barabási: Effect of surface morphology on the sputtering yields II. Ion sputtering from rippled surfaces, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 222, p. 335, 2004
- [18] Barna A., Sulyok A., Menyhard M.: Improved depth resolution of AES in-depth profiling, *Surface and Interface Analysis* 19, pp. 77–79, 1992
- [19] U. Valbusa, C. Boragno and F. Buatier de Mongeot: Nanostructuring surfaces by ion sputtering, *Journal of Physics: Condensed Matter* 14, p. 8153, 2002
- [20] A. R. González-Elipé, F. Yubero, J. M. Sanz: Low energy ion assisted film growth, Imperial College Press, London, 2003
- [21] P. Sigmund: Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets, *Physical Review* 184, pp. 383, 1969
- [22] K. Nordlund, J. Tarus, J. Keinonen, S.E. Donnelly, R.C. Birtcher, *Nucl. Instr. and Meth. B* 206, p.189, 2003
- [23] P. Süle, L. Kotis, L. Toth, M. Menyhard, W.F. Egelhoff Jr.: Asymmetric intermixing in Co/Ti bilayer, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 266, p. 904, 2008
- [24] W. Möller, W. Eckstein: TRIDYN – A TRIM simulation code including dynamic composition changes, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 2, pp. 814-818, 1984
- [25] W. Eckstein: Computer simulation of ion-solid interactions, Springer series in materials science 10, Ed. by U. Gonser et al., p.84, Springer-Verlag, Berlin, 1991
- [26] J. P. Biersack: Computer simulation of sputtering, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 27, pp. 21-36, 1987
- [27] U. Littmark and W.O. Hoffer: *NIM* 168, p.329, 1980
- [28] P. Sigmund: Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets. Erratum, *Physical Review* 187, p. 768, 1969
- [29] W. Jacob and J. Roth in: *Sputtering by Particle Bombardment*, Topics in Applied Physics 110, pp. 329-400, 2007

- [30] P. Sigmund: Sputtering by ion bombardment theoretical concepts, in R. Behrisch (Ed.): Sputtering by Particle Bombardment I, Topics in Applied Physics 47, p. 9, 1981
- [31] P. Sigmund (Ed.): Fundamental processes in sputtering of atoms and molecules, (SPUT92), Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 43, Copenhagen, 1993
- [32] Y-T. Cheng: Thermodynamic and fractal geometric aspects of ion – solid interactions, Materials science reports 5, p. 62, 1990
- [33] W. Bolse: Mechanism of ion beam induced atomic mixing in solids, Materials Science and Engineering A253, p. 194, 1998
- [34] H. Andersen, H. L. Bay: Sputtering by ion bombardment theoretical concepts, in R. Behrisch (Ed.): Sputtering by Particle Bombardment I, Topics in Applied Physics 47, p. 145, 1981
- [35] J. Bohdanský: An universal relation for the sputtering yield of monatomic solids at normal ion incidence, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 2, p. 587, 1984
- [36] C. Garcia-Rosales, W. Eckstein, J. Roth: Revised formulae for sputtering data, Journal of Nuclear Materials 218, p. 8, 1995
- [37] W. Eckstein, R. Preuss: New fit formulae for the sputtering yield, Journal of Nuclear Materials 320, pp. 209-213, 2003
- [38] H. Hansen, C. Polop, and T. Michely, A. Friedrich and H.M. Urbassek: Step Edge Sputtering Yield at Grazing Incidence Ion Bombardment, Physical Review Letters 92, p. 246106, 2004
- [39] Robert D. Kolasinski, James E. Polk, Dan Goebel, Lee K. Johnson: Carbon sputtering yield measurements at grazing incidence, Applied Surface Science 254, pp. 2506–2515, 2008
- [40] G. Carter in Sputtering by Particle Bombardment II, Topics in Applied Physics 52, p. 213, 1983
- [41] B. M. U. Scherzer in Sputtering by Particle Bombardment II, Topics in Applied Physics 52, p. 271, 1983
- [42] A. Zalar: Improved depth resolution by sample rotation during Auger electron spectroscopy depth profiling, Thin Solid Films 124, p. 223, 1985
- [43] A.D. Gaus, W. T. Htwe, J. A. Brand, T. J. Gay and M. Schulz: Energy spread and ion current measurements of several ion sources, Review of Scientific Instruments 65, p. 3739, 1994

- [44] V. M. Benveniste: System and method for detecting neutral particles in an ion beam, US Patent № 5814823, Eaton Corporation, Cleveland, Ohio, 1998
- [45] M P Seah and T S Nunney: Sputtering yields of compounds using argon ions, *Journal of Physics D: Applied Physics* 43, p. 253001, 2010
- [46] J. D. Williams, M. M. Gardner, M. L. Johnson and Paul Wilbur, Xenon sputter yield measurements for ion thruster materials, 28th International Electric Propulsion Conference cosponsored by the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES), European Office of Aerospace Research and Development of the USAF, Snecma Moteurs, and European Space Agency (ESA) Toulouse, France, NASA/CR—2003-212306, 2003
- [47] R. P. Doerner, D. G. Whyte and D. M. Goebel: Sputtering yield measurements during low energy xenon plasma bombardment, *Journal of Applied Physics* 93, p. 5816, 2003
- [48] B. Rubin, J.L. Topper, A.P. Yalin: Total and differential sputter yields of boron nitride measured by quartz crystal microbalance, *Journal of Physics D: Applied Physics* 42, p. 205205, 2009
- [49] Kazumasa Ikuse, Satoru Yoshimura, Masato Kiuchi, Kiyohiro Hine, Satoshi Hamaguchi: Measurement of Sticking Probability and Sputtering Yield of Au by Low-Energy Mass Selected Ion Beams with a Quartz Crystal Microbalance, *Journal of Physics, Conference Series* 106, p. 012016, 2008
- [50] E.P. EerNisse: Vacuum application of quartz resonators, *Journal of Vacuum Science and Technology* 12, p. 564, 1975
- [51] M. Kustner, W. Eckstein, V. Dose, J. Roth: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 145, pp. 320–331, 1998
- [52] Maris A. Mantenieks, John E. Foster, Pradosh. K. Ray, Shuttha V. Shutthanandan, Theva S. Thevuthasan: Presented as Paper IEPC-01-309 at the 27th International Electric Propulsion Conference, Pasadena, CA, 2001
- [53] P. Süle, M. Menyhard, L. Kotis, J. Labar, W. F. Egelhoff Jr.: Asymmetric transient enhanced intermixing in Pt/Ti, *Journal of Applied Physics* 101, p. 043502, 2007
- [54] A. Barna, B. Pecz and M. Menyhard, TEM sample preparation by ion milling/amorphization, *Micron* 30, p. 267, 1999
- [55] D. Briggs, M. P. Seah: Practical surface analysis: Auger and X-ray photoelectron spectroscopy Vol. 1, 2-nd. ed., p. 201, John Wiley & Sons Ltd., England, 1990
- [56] A. Jablonski, C.J. Powell: Electron effective attenuation lengths in electron spectroscopies, *Journal of Alloys and Compounds* 362, pp. 26–32, 2004

- [57] L. Zommer, A. Jablonski, L. Kotis and M. Menyhard: Monte Carlo calculation of backscattering factor for Ni–C multilayer system, *Journal of Physics D: Applied Physics* 41, p. 155312, 2008
- [58] M. Yoshiaki, H. Teruo: Theory of ion neutralization near the surface, *Surface Science* 97, p. 283, 1980
- [59] N.H. Tolk, B. Willerding, H. Steininger, W. Heiland, K.J. Snowdon: Resonant neutralisation of He ions into excited states at Cu(110) and Ni(110) surfaces, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 2, p. 488, 1984
- [60] J. C. Lancaster, F. J. Kontur, G. K. Walters, and F. B. Dunning: Dynamics of He⁺ ion neutralization at clean metal surfaces: Energy- and spin-resolved studies, *Physical Review B* 67, p. 115413, 2003
- [61] Barna A, Radnoczi G, Pecz B: Sample preparation techniques for TEM. In: Amelickx S., Van Dyck D., van Tendeloo J., editors. *Handbook for microscopy*, vol. 3, pp. 751–801, Weinheim, Germany: VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1997
- [62] Á. Barna: A new type ion milling equipment for sample preparation. *Proc. 8th European Congress on Electron Microscopy, Budapest 13-18 August*, Eds. Á. Csanády, P. Rölich, and D. Szabó, Budapest, pp. 107-108, 1984
- [63] Barna Á., Eds. Anderson R. et al, *MRS Proc.* 253, p.3, 1992
- [64] M. Nastasi, J. Mayer: *Ion Implantation and Synthesis of Materials*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, p. 165, 2006
- [65] L.E Davis, N. C MacDonald, P. W. Palmberg et al. (Eds.): *Handbook of Auger electron spectroscopy: A reference book of standard data for identification and interpretation of Augre electron spectroscopy data*, 2nd ed., Phys. Elect. Div., Perkin-Elmer Corp., Minesota, 197
- [66] P. Sigmund (Ed.): *Fundamental processes in sputtering of atoms and molecules*, (SPUT92), *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 43, Copenhagen, 1993
- [67] <http://www.nist.gov/srd/nist82.cfm>
- [68] A. Zalar, J. Kovac, B. Pracek, S. Hofmann, P. Panjan: AES depth profiling and interface analysis of C/Ta bilayers, *Applied Surface Science* 252, pp. 2056–2062, 2005
- [69] Személyes, írásbeli megbeszélésem J. F. Ziegler professzorral

- [70] H Bhuyan, M Favre, E Valderrama, G Avaria et al.: Formation of hexagonal silicon carbide by high energy ion beam irradiation on Si (1 0 0) substrate, *Journal of Physics D: Applied Physics* 40, p.127, 2007
- [71] Satoshi Tsukuda et al.: Fabrication of Nanowires Using High-Energy Ion Beams, *J. Phys. Chem. B* 108, p. 3407, 2004
- [72] J.A. Knapp, P. Borgesen, R.A. Zuhr (Eds.): Beam – Solid interaction: physical phenomena, in: part III MRS proceedings 157, 1989
- [73] L. Bischoff, J. Teichert, V. Heera: Focused ion beam sputtering investigations on SiC, *Applied Surface Science* 184, p. 372, 2001
- [74] J. Mayer, L. A. Giannuzzi, T. Kamino, and J. Michael: TEM sample preparation and FIB – induced damage, *MRS Bulletin* 32, p. 400, 2007
- [75] W. Reuter, G. J. Scilla: Application of a CF₃ primary ion source for depth profiling in Secondary Ion Mass Spectrometry, *Analytical Chemistry* 60, p. 1401, 1988
- [76] F. Kötter, A. Benninghoven: Secondary ion emission from polymer surfaces under Ar⁺, Xe⁺ and SF₅⁺ ion bombardment, *Applied Surface Science* 133, p. 57, 1998
- [77] S. Sun, C. Szakal, T. Roll et al.: Use of C60 cluster projectiles for sputter depth profiling of polycrystalline metals, *Surface and Interface Analysis* 36, p. 1367, 2004
- [78] D. P. Adams, T. M. Mayer, M. J. Vasile, and K. Archuleta: Effects of evolving surface morphology on yield during focused ion beam milling of carbon, *Applied Surface Science* 252, p. 2432, 2006
- [79] S. M. Rossnagel, R. S. Robinson, and H. R. Kaufman: Impact enhanced surface diffusion during impurity induced sputter cone formation, *Surface Science* 123, p. 89, 1982
- [80] S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn: Calculations of electron inelastic mean free paths. V. Data for 14 organic compounds over the 50\20132000 eV range, *Surface and Interface Analysis* 21, p. 165, 1994
- [81] M. Menyhard: On the performance of the TRIM simulation for the evaluation of auger depth profiles, *Surface and Interface Analysis* 26, p. 1001, 1998

- [82] J. Gyulai: Radiation damage and annealing in ion implantation, in: J.F. Ziegler (Ed.), Handbook of Ion Implantation Technology, IBM-Research, Yorktown Heights, NY, USA, pp. 69–119, 1992
- [83] The gun is the beta version of the medium energy ion gun which is under development at Technoorg Linda, available from <http://www.technoorg.hu>
- [84] Horvát György: Bevezetés a tesztelméletbe, Keraban könyvkiadó, Budapest 1993
- [85] W.H. Kirchhoff, G.P. Chambers, J. Fine, J. Vac. Sci. Technol. A 4, p. 1666, 1986
- [86] C.J. Powell, W.H. Kirchhoff személyes beszélgetés alapján
- [87] Wilhad Reuter, Gerald J. Scilla: Application of a trifluorocarbon ion (CF_3^+) primary ion source for depth profiling in secondary-ion mass spectrometry, Analytical Chemistry 60, pp. 1401–1404, 1988
- [88] W. Bolse, Mater. Sci. Eng. R 12, p. 53., 1994
- [89] T. Lohner, A. Simon, P. Petrik, M. Fried, A. Barna, M. Menyhard Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., submitted.
- [90] L. Bischoff, Ultramicroscopy 103, p. 59., 2005
- [91] D. McGrouthera, J.N. Chapman, F.W.M. Vanhelmont, J. Appl. Phys. 95, p.7772., 2004
- [92] C. Akhmadaliev, B. Schmidt, L. Bischoff, Appl. Phys. Lett. 89, p. 223129., 2006
- [93] J.C. Gonzalez, M.I.N. da Silva, D.P. Griffis, P.E. Russell, J. Vac. Sci. Technol. B 20, p. 2700., 2002
- [94] G.C. Gazzadi, E. Angeli, P. Facci, S. Frabboni, Appl. Phys. Lett. 89, p. 173112., (2006)
- [95] L. Bischoff, J. Teichert, V. Heera, Appl. Surf. Sci. 184, p. 372., 2001
- [96] C.-M. Park, J.A. Bain, T.W. Clinton, P.A.A. van der Heijden, T.J. Klemmer, Appl. Phys. Lett 84, p. 3331., 2004
- [97] W. Boxleitner, G. Hobler, V. Kluppel, H. Cerva, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 102, pp. 175–177, 2001
- [98] D. Kiener, C. Motz, M. Rester, M. Jenko, G. Dehm, Mater. Sci. Eng. A 459, p. 262, 2007
- [99] W. Reuter, G.J. Scilla, Anal. Chem. 60, p.1401, 1988
- [100] N. Ikarashi, K. Watanabe, Jpn. J. Appl. Phys. 39, p. 1278, 2000
- [101] K. Iltgen, C. Bendel, A. Benninghoven, E. Niehuis, J. Vac. Sci. Technol. A 15, p. 460, 1997

- [102] Zhouguang Wang, Takeharu Kato, Tsukasa Hirayama, Naoko Kato, Katsuhiro Sasaki, Hiroyasu Saka, Appl. Surf. Sci. 241, p. 80, 2005
- [103] J.P. McCaffrey, M.W. Phaneuf, L.D. Madsen, Ultramicroscopy 87, p. 97, 2001
- [104] S. T. Nakagawa and Y. Yamamura: Interatomic potential in solids and its applications to range calculations, Radiation Effects 105, pp. 239 – 256, 1988
- [105] Menyhard M., Barna A., Sulyok A., Jarrendahl K., Sundgren J. E., Biersack J. P.: Low-energy ion mixing in si-ge multilayer system, Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-beam 85, pp. 383-387, 1994
- [106] Menyhard M., Sulyok A., Pentek K., Zeltser A. M.: Demixing in spin valve structures: an Auger depth profiling study, Thin Solid Films 366, pp. 129-134., 2000
- [107] Radnoczi Gy.: Elektronmikroszkópia I., Jegyzet ELTE 1994
- [108] G. Binnig, C. F. Quate and Ch. Gerber: Atomic Force Microscope, Physical Review Letters 56, pp. 930–933, 1986